

Kunad, Ayleen

**Abschätzung der Formaldehydimmissionen im Umkreis
von ausgewählten Anlagen unter besonderer Berücksichtigung
des Abbaus in der Atmosphäre**

eingereicht als

DIPLOMARBEIT

an der

HOCHSCHULE MITTWEIDA

UNIVERSITY OF APPLIED SCIENCES

Fakultät Mathematik/ Naturwissenschaften/ Informatik

Dresden, 2010

Erstprüfer: Prof. Dr. rer. nat. P. Radehaus

Zweitprüfer: Dipl.-Phys. P. Fleischer

Vorgelegte Arbeit wurde verteidigt am:

Bibliografische Beschreibung:

Kunad, Ayleen:

Abschätzung der Formaldehydimmissionen im Umkreis von ausgewählten Anlagen unter besonderer Berücksichtigung des Abbaus in der Atmosphäre. – 2010. – 75 S. Mittweida, Hochschule Mittweida, Fakultät Mathematik/Naturwissenschaften/Informatik, Diplomarbeit, 2010

Kurzreferat:

Ziel dieser Diplomarbeit ist die Abschätzung der Formaldehydimmissionen im Umkreis ausgewählter Anlagen unter besonderer Berücksichtigung des Abbaus in der Atmosphäre. In der vorliegenden Arbeit werden ein Emissionskataster für Sachsen erstellt und anschließend die Ergebnisse diskutiert. Darüber hinaus werden Ausbreitungsrechnungen für die einzelnen Anlagen durchgeführt, um die Transmission von Formaldehyd bei unterschiedlichen Witterungseinflüssen bzw. die Immissionskonzentrationen abschätzen zu können. Somit sollen mögliche Gefahren bzw. Beeinträchtigungen auf die umgebende Umwelt aufgrund des Verhaltens von Formaldehyd in der Atmosphäre evaluiert werden.

Vorwort

Mein besonderer Dank richtet sich an meine Projektbetreuer des Landesamtes für Umwelt, Landwirtschaft und Geologie, den Herren Peter Gamer, Torsten Moczigemba sowie Peter Fleischer des Referats 52 „Anlagenbezogener Immissionsschutz“, die durch die Vergabe des Themas „Abschätzung von Formaldehydimmissionen an ausgewählten Anlagen in Sachsen unter besonderer Berücksichtigung des Abbaus in der Atmosphäre“ diese Arbeit ermöglicht haben.

Des Weiteren ist die hervorragende Zusammenarbeit, die unterstützende Anleitung sowie die Bereitstellung von entsprechender Fachliteratur und Emissionsdaten aus der Datenbank AIS-I zu betonen. In diesem Zusammenhang möchte ich speziell Frau Alex danken, die mir die Recherche in der Datenbank ermöglichte und mir die Emissionsdaten lieferte.

Darüber hinaus gilt der Frau Dr. Andrea Hausmann des Referats 51 „Luftqualität“ gebührender Dank für die Beantwortung meiner vielen Fragen zur Erstellung eines Emissionskatasters für Formaldehyd in Sachsen.

Herausragender Dank gilt allerdings meinem Betreuer Herrn Peter Fleischer für die Erklärung der Ausbreitungssoftware sowie die Mitwirkung an den Ausbreitungsrechnungen, die zur Erstellung meiner Arbeit notwendig waren. Dieser war stets offen für Fragestellungen und Probleme, welche sich im Zusammenhang mit meiner Arbeit ergaben. Dadurch wurde eine optimale Bearbeitung der Thematik ermöglicht.

Nicht zuletzt möchte ich vor allem meiner Hochschulbetreuerin Frau Prof. Radehaus danken, die mich während meiner Diplomarbeit betreut und umfangreich unterstützt hat.

Inhaltsverzeichnis

Abbildungsverzeichnis	VI
Abkürzungsverzeichnis	VII
Tabellenverzeichnis	VIII
1 Einleitung	1
1.1 Problemstellung	1
1.2 Lösungsweg.....	2
1.3 Aufgabenstellung	3
2 Formaldehyd.....	4
2.1 Überblick.....	4
2.2 Toxizität des Formaldehyds	6
2.3 Kanzerogenität des Formaldehyds.....	6
2.4 Akute Toxizität des Formaldehyds	8
2.5 Neurotoxizität des Formaldehyds.....	9
2.6 Ökotoxizität.....	9
2.7 Richt- und Grenzwerte für Formaldehyd	10
3 Emissionsquellen für Formaldehyd	11
3.1 Natürliche Emissionsquellen	12
3.2 Anthropogene Emissionsquellen.....	13
3.2.1 Gießerei	16
3.2.2 BHKW	20
3.2.3 Spanplattenherstellung.....	22
3.2.4 Duroplastherstellung/ -verarbeitung.....	22
3.2.5 Glasfaserherstellung	23
4 Emissionskataster für Sachsen.....	24
4.1 Methodik und Darstellung	24
4.2 Bewertung des Emissionskatasters für Sachsen.....	34
5 Abbau von Formaldehyd in der Atmosphäre.....	37
5.1 Aufbau der Atmosphäre	37
5.2 Photolytischer Abbau von Formaldehyd.....	41
5.3 Radikalischer Abbau von Formaldehyd.....	42
5.4 Deposition.....	46

5.4.1	Nasse Deposition	46
5.4.2	Trockene Deposition	51
5.5	Geografische und meteorologische Einflüsse auf die Ausbreitung von Formaldehyd	52
6	Ausbreitungsrechnung für Formaldehyd	58
6.1	Überblick über LASAT 3.0.....	58
6.2	Darstellung und Bewertung der Ausbreitungsrechnungen.....	60
7	Zusammenfassung und Ausblick.....	74
	Literaturverzeichnis	IX
	Erklärung zur selbstständigen Anfertigung der Diplomarbeit	XIV

Abbildungsverzeichnis

Abb. 1:	Strukturformel Formaldehyd [45]	4
Abb. 2:	Weltweiter Schadstoffausstoß von Formaldehyd	11
Abb. 3:	Überblick über die Emissionsquellen von Formaldehyd	13
Abb. 4:	Gießereiprozess	19
Abb. 5:	Funktionsweise eines BHKW [47]	20
Abb. 6:	Reaktionsverlauf der Methanoxidation und Formaldehydbildung [4] S.13 21	
Abb. 7:	Duroplastherstellung [32]	23
Abb. 8:	Kreisdiagramm Quellgruppen für Formaldehyd	28
Abb. 9:	Einordnung der ArcSDE-Datenbank [21]	31
Abb. 10:	Emissionskataster für Formaldehyd im Freistaat Sachsen	33
Abb. 11:	Aufbau und Temperaturverlauf der Atmosphäre [35]	38
Abb. 12:	Abbauvorgänge in der Atmosphäre	40
Abb. 13:	Troposphärenchemische Prozesse [13] S. 4	43
Abb. 14:	Abbau von Formaldehyd durch die Reaktion mit Radikalen [11] S.16 44	
Abb. 15:	Temperaturabhängigkeit der Henrykonstante [44]	46
Abb. 16:	Blattnekrosen [49]	50
Abb. 17:	Grenzschichtprofil Atmosphäre [46]	51
Abb. 18:	Temperaturen im Jahresmittel in Sachsen [40]	53
Abb. 19:	Sommertemperaturen von 1991 – 2005 in Sachsen [40]	54
Abb. 20:	Wintertemperaturen von 1991 – 2005 in Sachsen [40]	55
Abb. 21:	Klimatische Wasserbilanz von 1991-2005 in Sachsen [40]	56
Abb. 22:	Kriterien zur Abschätzung der Immissionssituation	60
Abb. 23:	Gießerei Lösnitz im ebenen Gelände	63
Abb. 24:	Gießerei Lösnitz in Erzgebirgslage	64
Abb. 25:	Anlage zur Herstellung von Spanplatten	65
Abb. 26:	Stahlwerk Riesa	66
Abb. 27:	Gießerei 1 Schönheide	67
Abb. 28:	Gießerei 2 Schönheide	68
Abb. 29:	Gießerei Elterlein	69
Abb. 30:	Gießerei Erla	70
Abb. 31:	Ausbreitungsrechnung mit Ammoniak	72
Abb. 32:	Ausbreitungsrechnung „Gas unbekannt“	73

Abkürzungsverzeichnis

AIS-I	Anlageninformationssystem-Immissionsschutz
ALK	Automatisierte Liegenschaftskarte
ArcGIS	Geoinformationssystem
ArcSDE	Arc - Spatial Data Engine
ATKIS-DLM25	Amtliches Topographisch-Kartographisches Informationssystem
AUSTAL2000	Ausbreitungsrechnung der Technischen Anleitung zur Reinhaltung der Luft
BHKW	Blockheizkraftwerk
BImSchG	Bundesimmissionsschutzgesetz
CAS-Nummer	Chemical Abstracts Service - Nummer
EEG	Erneuerbare-Energie-Gesetz
GISV	Geoinformationssystem Vektordaten
IfU	Privates Institut für Umweltanalysen
Lasat	Lagrange – Simulation von Aerosol -Transport
NM VOC	Non methane volatile organic compounds / flüchtige organische Verbindungen ohne Methan
POM-Materialien	Polyoxymethylen - Materialien
ppm	parts per million
ppt	parts per trillion
PUR-Coldbox	Polyurethan - Coldbox
R-Sätze	Risiko - Sätze
S-Sätze	Sicherheits - Sätze
TA Luft	Technische Anleitung zur Reinhaltung der Luft
TRGS	Technische Regeln für Gefahrstoffe
VOC	Volatile organic compounds / flüchtige organische Verbindungen
VÜK200	Verwaltungsgrenzenübersichtskarte Stand 2006

Tabellenverzeichnis

Tab. 1:	Eigenschaften von Formaldehyd [15] S. 261	4
Tab. 2:	Wirkung des Formaldehyds in der Luft auf den Menschen [41]	8
Tab. 3:	Grenz- und Richtwerte von Formaldehyd [11] S.7	10
Tab. 4:	Methoden zur Darstellung eines Emissionskatasters [40].....	25
Tab. 5:	Anzahl der Quellen.....	27
Tab. 6:	Witterungsverhältnisse 2007 [42]	52
Tab. 7:	Vergleich von Ammoniak mit Formaldehyd	71

1 Einleitung

1.1 Problemstellung

Die Erdatmosphäre enthält neben ihren natürlichen Hauptbestandteilen eine Vielzahl an gas- und partikelförmigen Zusatzkomponenten. Diese beeinflussen das gesamte Wettergeschehen, die Luftqualität sowie andere beobachtbare Phänomene. Dabei bildet die Anreicherung der Luft mit Stoffen aus natürlichen Quellen ein wesentliches Element für Wolkenbildungsprozesse, für die Streuung und Absorption elektromagnetischer Strahlung, für das elektrische Feld der Atmosphäre sowie für viele bioklimatische Reize auf Tier und Mensch. [25] S. 1

Bereits seit Anbeginn der Industrialisierung wurde die Umwelt durch die Emission von Schadstoffen drastisch verändert. Auch in den Folgejahren bewirkte die fortschreitende Landnutzung sowie die rasante Zunahme des Kraftfahrzeugverkehrs und der Industrie eine Modifikation der Zusammensetzung der unteren und oberen Atmosphäre. Aufgrund dieser Einschnitte in die Natur werden tief greifende Umweltprobleme wie die globale Klimaerwärmung durch Treibhausgase, das Ozonloch, der Saure Regen, das Auftreten von photochemischem Smog sowie die abnehmende Luftqualität sichtbar. Dennoch sind die Veränderungen der Umwelt nicht so drastisch, wie es angesichts der weltweit steigenden Emissionen zu erwarten wäre. Daran wird eine der wichtigsten Eigenschaften der Atmosphäre deutlich, nämlich ihre Selbstreinigungskraft, die Fähigkeit einen vorhandenen Spurenstoff chemisch umzuwandeln und ihn aus der Atmosphäre zu entfernen, um somit eine dauerhafte Akkumulation in der Umwelt zu verhindern. [10] S. 89f, [17] S. 136

Um die Eingriffe in die Natur durch schädliche Emissionen dennoch auf ein verträgliches Maß zu begrenzen, wurden für die Industriestaaten umfangreiche gesetzliche Vorschriften eingeführt. So dürfen Anlagen gemäß des Erneuerbaren-Energie-Gesetzes den Grenzwert für Formaldehydemissionen im Abgas von 60 mg/m^3 nicht überschreiten. Aufgrund einer Novellierung des EEG-Gesetzes im Jahre 2009 wird der maximale Emissionswert für Biogasanlagen mit alten und neuen Verbrennungsmotoranlagen, welche Biogas als Brennstoff einsetzen, auf 40 mg/m^3 , bezogen auf 5% O_2 , heruntergesetzt. Der Formaldehyd-Bonus gemäß EEG-Gesetz wird somit nur bei Einhaltung dieses Grenzwertes gezahlt, da 60 mg/m^3 nicht mehr als derzeitiger Stand der Technik von Biogasanlagen angesehen werden. In Sachsen ist der Grenzwert zum aktuellen Stand noch freiwillig. [43] Dennoch sind Lücken seitens der nationalen und internationalen Gesetzgebung bezüglich eines Immissionsgrenzwertes für Formaldehydemittenten in der Außenluft vorhanden. Derzeitig existieren lediglich Richtwerte,

nach denen eine grobe Abschätzung der Wirkung von Formaldehyd auf die Umwelt möglich ist. Da 2006 nach einer Neubewertung seitens der Bundesanstalt für Risikobewertung Formaldehyd als kanzerogener Stoff in die Kategorie 1 der TA Luft eingestuft wurde, sollte eine exakte Abschätzung und Beurteilung der Gefährlichkeit der Immissionen, welche von Industrieanlagen und Blockheizkraftwerken verursacht werden, möglich sein. [34] Eine gesetzliche Regelung bezüglich eines Immissionsgrenzwertes für Formaldehyd ist somit dringend von Nöten.

1.2 Lösungsweg

Das reaktive Formaldehyd wird durch anthropogene sowie durch natürliche Quellen in die Atmosphäre emittiert. Neben dem Ausstoß aus Blockheizkraftwerken durch unvollständige Verbrennungsprozesse wird Formaldehyd auch bei verschiedenen Industrieprozessen in die Atmosphäre frei. Deshalb wird in den nachfolgenden Ausführungen die gesamte Bandbreite an Formaldehydemittenten Betrachtung finden, um die Blockheizkraftwerke nicht aus dem Gesamtkontext herauszulösen. Somit werden zuerst alle wesentlichen Emissionsquellen ermittelt und deren Ausstoß an Formaldehyd quantifiziert. Die eruierten Formaldehydemissionen, welche infolge zivilisatorischer Tätigkeiten in die Umwelt eingebracht wurden, sollen zudem ins Verhältnis zu den natürlichen Emissionen gesetzt werden. Dadurch kann letztlich die Wirkung auf den Mensch und die Umwelt objektiv beurteilt werden.

Zur Quantifizierung der Formaldehydemissionen in Sachsen wird eine Datenbankabfrage im AIS-I durchgeführt. Die benötigten Emissionsdaten können dabei aus den Emissionsberichten der erklärungsspflichtigen Anlagen entnommen werden. Anschließend wird aus den Gesamtemissionen der Formaldehydemittenten in Sachsen ein Emissionskataster für den Freistaat Sachsen erstellt. Zur Realisierung dieses Katasters stehen verschiedene Softwareprogramme wie z.B. Microsoft-Excel oder ArcGIS zur Verfügung. [51] Im Rahmen dieser Arbeit entschied ich mich für das Programm ArcGIS, um eine Kartendarstellung zu entwickeln und die Ergebnisse visuell veranschaulichen zu können.

Nach der Erstellung des Emissionskatasters, welches lediglich die Gesamtemissionen der einzelnen Quellgruppen bestimmt, soll nachfolgend die Ausbreitung dieser Gesamtemissionen innerhalb Sachsens berechnet werden. Vorhergehend ist es jedoch notwendig Kenntnisse über die Struktur und Funktion der Atmosphäre sowie zu deren Dynamik zu besitzen, um die chemischen und physikalischen Abbauvorgänge bzw. das Verhalten von Formaldehyd in der Atmosphäre in vollem Umfang begreiflich zu

machen. In diesem Zusammenhang sollen die komplexen Wechselwirkungsprozesse zwischen Formaldehyd und den abiotischen Komponenten der Atmosphäre erläutert werden, da diese zumeist Ausgangspunkt für Umweltveränderungen sind. Physikalische, chemische und biologische, reversible oder irreversible Veränderungen der Umwelt können letztendlich das Resultat dieser Prozesse sein. [6] S. 79

Mittels eines mathematischen Modells können die in der Atmosphäre ablaufenden physikalischen und chemischen Vorgänge nachgebildet werden. Dieses Modell ermöglicht es, die Wirkungskette von der Emission von Luftschadstoffen über Ausbreitung und Umwandlung in der Atmosphäre bis hin zur Immission zu beschreiben. So können die Formaldehydbelastungen durch den Einsatz eines solchen Modells abgeschätzt werden. Es wird somit die Möglichkeit einer quantitativen Prognose der zu erwartenden Immissionen gegeben. Diese Modelle benötigen als Eingangsdaten unter anderem Emissionsdaten in geeigneter räumlicher und zeitlicher Auflösung. Bei dieser Ausbreitungsrechnung wird die Konzentration der Immission im Umkreis von Emissionsquellen berechnet. Grundlage dieser Rechnung bilden Emission, Vorbelastung der Luft und meteorologische Randbedingungen. [25] S. 10 Es gibt verschiedene Methoden der Ausbreitungsrechnung, denen jeweils auch verschiedene mathematische Modelle zugrunde liegen. Im Rahmen meiner Arbeit wird das Programm LASAT 3.0 verwendet, welches auf dem Lagrange-Modell basiert.

1.3 Aufgabenstellung

Als Resultat dieser Arbeit sollen die Emissionsquellen von Formaldehyd ermittelt und beurteilt werden. Daraus ableitend soll die Erstellung des Emissionskatasters für den Freistaat Sachsen im Vordergrund stehen, in dem die entsprechenden Emissionsquellen aufgezeigt und quantitativ bewertet werden können. Des Weiteren soll eine Erläuterung der chemischen und physikalischen Abbauvorgänge von Formaldehyd in der Atmosphäre unter unterschiedlichen Witterungseinflüssen erfolgen. Damit in Zusammenhang stehend sollen entsprechende Ausbreitungsrechnungen für Formaldehyd durchgeführt und deren Ergebnisse diskutiert werden. Somit ist eine Abschätzung und Bewertung der Immissionssituation in Sachsen möglich.

2 Formaldehyd

2.1 Überblick

„Formaldehyd ist ein giftiges, farbloses, stehend riechendes Gas, welches der Gruppe der Aldehyde zugeordnet werden kann.“ [16] S. 74 Die Bildung erfolgt über die katalytische Oxidation von Methanol. Aus der in Abb. 1 dargestellten Strukturformel resultieren die Eigenschaften von Formaldehyd, welche in Tab. 1 überblicksmäßig zusammengefasst sind.

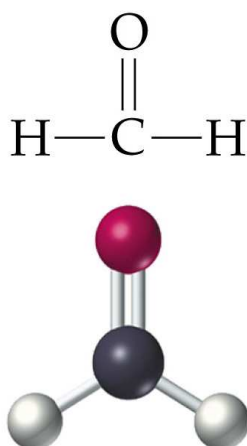


Abb. 1: Strukturformel Formaldehyd [45]

Die Doppelbindung in der Aldehydgruppe des Formaldehyds weist auf die Reaktionsfreudigkeit dieses Stoffes hin, da diese schnell durch Radikale bzw. Strahlungseinwirkungen aufgespalten wird. Dadurch ist Formaldehyd biologisch leicht abbaubar. Zwischen einzelnen Formaldehyd-Molekülen wirken Dipol-Dipol-Kräfte aufgrund der starken Polarität der C-O-Bindung. Da kein sauerstoffgebundenes Wasserstoffatom vorliegt, kommt es nicht zur Ausbildung von Wasserstoffbrückenbindungen. Dadurch liegen die Siedepunkte zwischen denen von Alkanen und Alkoholen. Mit Wasser kann Formaldehyd allerdings Wasserstoffbrückenbindungen eingehen, weshalb dieses eine hohe Wasserlöslichkeit besitzt. [2] S. 455

Tab. 1: Eigenschaften von Formaldehyd [15] S. 261

Eigenschaften	Formaldehyd
CAS-Nummer	50-00-0
Farbe	farblos

Eigenschaften	Formaldehyd
Aggregatzustand	gasförmig
Andere Namen	Methanal Oxomethan Ameisenaldehyd Formylhydrat
Molare Masse	30,03 g/mol
Schmelzpunkt	-117 °C
Dampfdruck	101,3 kPa bei -19°C
Siedepunkt	-19 °C
Dichte	0,815 g/cm ³
Verhalten in wässrigen Lösungen	Vorliegen als geminales Diol
Henry-Konstante	3200 mol atm ⁻¹
Abbauverhalten	biologisch leicht abbaubar
Toxizität	Formaldehyd wirkt reizend auf Haut und Augen Formaldehyd ist mutagen Formaldehyd ist kanzerogen Keine Bioakkumulation
Ökotoxizität	aquatische Toxizität Formaldehyd wirkt bakterizid und fungizid Hohe Formaldehydkonzentrationen können zu Veränderungen der Bodenbiologie führen
WGK (Wassergefährdungsklasse)	2 (wassergefährdend)
R-Sätze	R: 23/24/25-34-40-43
S-Sätze	S: (1/2)-26-36/37/39-45-51

2.2 Toxizität des Formaldehyds

Seit Mitte der siebziger Jahre finden Diskussionen um die gesundheitsschädigende Wirkung von Formaldehyd statt. Deshalb wurde in den Folgejahren eine große Anzahl an Untersuchungen zur Toxizität durchgeführt. Dabei muss allerdings unterschieden werden, auf welchem Weg Formaldehyd in den Organismus gelangt, da gasförmiges Formaldehyd aufgrund seiner großen Reaktivität und der hohen Wasserlöslichkeit bereits zu 90% im oberen Bereich der Atemwege resorbiert wird. Dadurch wirkt es anders als oral aufgenommenes, wässriges Formaldehyd, welches bis in den Magen gelangen kann. [41] Dort kann in Kombination mit der dort vorhandenen Salzsäure das bekannte Kanzerogen Bis(chlormethyl)ether gebildet werden. In der Regel wird Formaldehyd, welches im Körper selbst als Abbauprodukt von z.B. Koffein vorhanden ist, jedoch schnell zu Ameisensäure und Methanol metabolisiert. Dieser Abbau findet insbesondere in der Leber und den Erythrozyten statt.

Darüber hinaus gilt Formaldehyd infolge seiner großen Verbreitung in der verarbeitenden Industrie und im Handwerk als eines der wichtigsten Kontaktallergene, trotz seiner als relativ gering eingestuften allergenen Wirkung. Die Kontaktekzeme treten vor allem berufsbedingt im medizinischen Bereich durch die Verwendung von Desinfektionsmitteln auf. [38], [11] S. 4

Im Folgenden soll die Toxizität von gasförmigem Formaldehyd eingehender erläutert werden, wobei vor allem auch die Frage nach dem krebserzeugenden Potential von Formaldehyd geklärt werden soll.

2.3 Kanzerogenität des Formaldehyds

Die Frage nach einer möglichen Kanzerogenität von Formaldehyd wurde lange Zeit in Expertenkreisen diskutiert. Infolge zahlreicher Tierversuche mit Mäusen und Ratten, die inhalativen Langzeitexpositionen von bis zu 15 ppm ausgesetzt wurden, und der darin auftretenden Häufung von Nasenrachentumoren, galt Formaldehyd auch beim Menschen als kanzerogen. Es wurde eine Einstufung in die Kategorie 2 gefordert. Diese Untersuchungen, welche in den USA 1995 stattfanden, waren allerdings sehr umstritten aufgrund der unrealistisch hohen Expositionen, denen die Tiere ausgesetzt waren. Deshalb wurde Formaldehyd lediglich in den TRGS in die Kategorie 3 eingeordnet infolge der umstrittenen Kanzerogenität des Schadstoffes. Dort befinden sich Stoffe, die wegen möglicher krebserregender Wirkung beim Menschen Anlass zur Besorgnis geben, über die jedoch nicht genügend Informationen für eine befriedigende Beurteilung vorliegen. Die Einordnung in die Kategorie 3 der TRGS wird als Grundlage

für die Einordnung in die TA Luft genommen. Dabei gilt für krebserzeugende Stoffe der Kategorie 3 ein Grenzwert von 1 mg/m³. [48], [11] S.6

Nach einer Expertenkonsultation von der International Agency for Research on Cancer wurde Mitte 2004 mitgeteilt, dass Formaldehyd nach einer Neubewertung als Humankarzinogen angesehen und somit der Kategorie 1 zugeordnet werden kann. Dieser Schadstoff wurde dabei lediglich im Hinblick auf die Aufnahme über die Atemluft als Humankarzinogen eingestuft. Des Weiteren wird Formaldehyd durch Inhalation sowie über den dermalen und oralen Aufnahmeweg absorbiert. Bedingt durch seine starke Reaktivität am Ort des primären Kontaktes und durch lokalen Metabolismus kommt es im Blut von Menschen nicht zu einer Erhöhung der physiologischen Konzentration von Formaldehyd und somit zu einer äußerst geringen systemischen Bioverfügbarkeit. Durch die lokale Reaktivität von Formaldehyd wirkt es primär in den Bereichen seines ersten Kontaktes. Untersuchungen an Freiwilligen zeigten, dass beim Menschen nach Inhalation von Formaldehyd Schädigungen im oberen Atemtrakt auftraten, die denen von Affen oder Ratten vergleichbar sind. Es zeigte sich im Vergleich exponierter bzw. nichtexponierter Arbeiter, dass die Zahl der Todesfälle durch Nasenrachentumoren bei den exponierten Arbeitern fast doppelt so hoch waren, da diese wiederkehrenden Spitzenbelastungen (> 4ppm) ausgesetzt waren. Das relative Risiko für Todesfälle durch Tumore war ab einer Konzentration von 1ppm signifikant erhöht. Insgesamt wurde der kausale Zusammenhang zwischen einer Formaldehydexposition und der Entstehung von Nasenrachentumoren beim Menschen ausreichend bestätigt. Somit sollte Formaldehyd nach europäischen Vorgaben zur Einstufung von gefährlichen Stoffen und Zubereitungen als Karzinogen der Kategorie 1 bewertet werden.

Diesbezüglich wurde im Jahr 2006 von der Bundesanstalt für Risikobewertung eine Einstufung entsprechend der EU-Kategorie 1 gefordert, bei der ein Grenzwert von 0,05 mg/m³ gilt. Bereits in Frankreich wurde Formaldehyd am 13.7.2006 nach einem ministeriellen Erlass als krebserzeugend in die Kategorie 1 eingestuft. Dabei besteht ein Verwendungsverbot bzw. eine Verpflichtung zur Substitution von Formaldehyd. Bislang wurde allerdings keine toxikologische Einstufung in die Kategorie 1 seitens der EU bzw. seitens Deutschland vorgenommen. Diesbezüglich besteht somit großer Handlungsbedarf und Nachholungsbedarf. [34]

2.4 Akute Toxizität des Formaldehyds

Formaldehydexpositionen können akute Symptome beim Menschen hervorrufen, welche in Tab. 2 zusammengefasst sind. Die großen Konzentrationsbereiche, in denen die Symptome auftreten können, repräsentieren die unterschiedliche Empfindlichkeit verschiedener Probanden auf Formaldehyd. In verschiedenen durchgeführten Studien wiesen häufig Probanden bereits bei nicht vorhandener Schadstoffbelastung Reizungen an Augen oder Schleimhäuten auf. Deshalb sollte aus den Studien diejenige Schadbelastung ermittelt werden, bei der signifikant mehr Probanden über Irritationen klagten als im Zustand der Nichtbelastung. Im Fall des Formaldehyds ist dies eine Belastung von 0,3 ppm, ab der eine signifikante Häufung von Augenreizungen auftritt. Dieser Wert kann als Schwelle betrachtet werden, bei der die meisten Probanden bereits über Irritationen an den Augen und Schleimhäuten klagten. Normalerweise kann allerdings erst ab einer Konzentration von 1 ppm von einer Reizung der Augen ausgegangen werden. Ab dieser Konzentration sind somit sicher Augenreizungen zu erwarten. Der menschliche Körper scheint sich jedoch an die Formaldehydbelastung zu gewöhnen. Die Reizungen der oberen Atemwege sowie der Augen nehmen in der Regel nach einigen Minuten oder Stunden wieder ab. [11] S.4

Tab. 2: Wirkung des Formaldehyds in der Luft auf den Menschen [41]

HCHO-Konzentration in ppm	Beobachtbare Wirkung
< 0,05 - 1,0	Geruchsschwelle
0,01 - 1,6	Schwelle für Augenreizung
0,08 - 1,6	Augen und Nasenreizung
0,5	Reizung der Kehle
2 - 3	Stechen in Augen, Nase, Rachen
3 - 5	Zunehmendes Unbehagen Starker Tränenfluss
10 - 20	Starker Tränenfluss Atemnot und Husten
> 30	Lebensgefahr

2.5 Neurotoxizität des Formaldehyds

Über die Neurotoxizität des Formaldehyds liegen vergleichsweise wenige Erkenntnisse vor. Das Formaldehyd kann als führende Substanz erachtet werden, wenn es um die Untersuchungen des so genannten „sick building syndrome“ geht. Unter diesem Begriff wird die Gesamtheit der Beschwerden zusammengefasst, die von allgemeinem Unwohlsein, Migräne, Heiserkeit und Beschwerden in den oberen Atemwegen reichen. Es ist allerdings nicht ausreichend diese Symptome allein auf das Vorhandensein eines Schadstoffes zu reduzieren. Dafür ist das umgebende Gemisch an Schadstoffen meist zu komplex oder unbestimmt. [48]

2.6 Ökotoxizität

Formaldehyd liegt natürlich in der Umwelt vor, wird aber auch durch zivilisatorische Tätigkeiten in diese eingetragen. Aufgrund des hohen Dampfdruckes von Formaldehyd erweist sich der Stoff als sehr flüchtig, wodurch dieser leicht in die Atmosphäre entweichen kann. Des Weiteren besitzt Formaldehyd eine unbegrenzte Mischbarkeit in aquatischen Systemen infolge der hohen Henrykonstante. Dadurch wird Formaldehyd in der Atmosphäre rasch biologisch abgebaut. Der Stoff ist allerdings schädlich für Wasserorganismen. Akute Schädigungen aquatischer Organismen sind dabei lediglich bei massiven Einträgen und dann nur kurzzeitig zu erwarten wegen der hohen Flüchtigkeit des Stoffes. Unter aeroben Bedingungen wird Formaldehyd in ca. 48h (20°C) nahezu vollständig abgebaut, unter anaeroben Bedingungen in ca. 30h.

Werden Formaldehydemissionen durch nasse Deposition ausgewaschen, so kommt es zur Umwandlung des Formaldehyds zu Ameisensäure und Salpetersäure, welche in Form von saurem Regen in die Umwelt eingebracht werden. Dadurch wird eine Schädigung der Wälder aufgrund der Bildung von z.B. Blattnekrosen verursacht. Der Abbauvorgang der nassen Deposition wird in 5.4.1 jedoch eingehender erläutert. Eine Bio- sowie Geoakkumulation erfolgt nicht. Infolge des raschen Abbaus sind chronische Schädigungen von Freilandorganismen nicht zu erwarten. Die Frage des Abbaus und der Umwandlung durch chemische, biologische und physikalische Vorgänge in der Umwelt sind für die Beurteilung der Gefährlichkeit von zentraler Bedeutung, da ein direkter Zusammenhang mit der Persistenz und damit zu einer möglichen Langzeitwirkung besteht. Eine längerfristige Wirkung ist allerdings nur bei Stoffen zu erwarten, welche über eine längere Zeit in der Atmosphäre verfügbar sind, d.h. chemisch nicht verändert werden. Unter Normalbedingungen ist Formaldehyd somit nicht persistent. [9] S. 297-299, [15] S.263f

2.7 Richt- und Grenzwerte für Formaldehyd

Die Toxizität von Formaldehyd und seine weite Verbreitung haben natürlich zu einer Vielzahl von Vorschriften zum Umgang mit und zum Schutz gegen Formaldehyd geführt. Einige davon, die maximale Immission betreffend, sind in Tab. 3 aufgeführt.

Tab. 3: Grenz- und Richtwerte von Formaldehyd [11] S.7

Grenz- bzw. Richtwerte	HCHO-Konzentration
Sicherheitsdatenblatt Formaldehyd	0,62 mg/m ³
TA Luft 2002 Nr. 5.2.7, (Überarbeitung) Einordnung Kategorie 3	1 mg/m ³
Grenzwert für Innenräume	0,12 mg/m ³ (0,1 ppm)
Max. Immissionskonzentration (MIK-Wert) des VDI (Nr. 2306)	
Bei Dauerexposition (bis 30 Minuten)	0,024 mg/m ³ (0,02 ppm)
Bei kurzfristiger Spitzenbelastung	0,072 mg/m ³ (0,06 ppm)
WHO Richtwert	0,096 mg/m ³ (0,08 ppm)

Für die Humankanzerogenität von Formaldehyd wurde seitens des Bundesinstituts für Risikobewertung eine praktische Schwelle in der Innenraumluft postuliert, unterhalb derer ein nennenswertes kanzerogenes Risiko nicht mehr zu erwarten ist. „In der Vergangenheit wurde bei der Bewertung von Substanzen, deren kanzerogene Wirkung über eine Veränderung der Erbinformation ausgelöst wird, ein vereinfachter Ansatz zugrunde gelegt. Dieser verlangte, dass jede Menge des Schadstoffes, der zu einer Erbgutveränderung führt, als schädlich angesehen und kein Schwellenwert abgeleitet wurde.“ [34] Bei Formaldehyd liegen der Tumorentstehung aber zwei biologische Wirkmechanismen zugrunde, die oberhalb einer bestimmten Konzentration gemeinsam wirksam werden. Die zellschädigende Wirkung, die eine reaktive Zellproliferation auslöst, und die Veränderung der Erbinformation. Auf der Basis von Tierdaten zur Zellproliferation sowie von Humandaten zur sensorischen Irritation des oberen Respirationstraktes wurde deshalb für Formaldehyd eine Luftkonzentration als sogenannter „safe“ level abgeleitet, die bei 0,1 ppm (0,124 mg/m³) liegt. Dieser Wert stellt eine Expositionskonzentration dar, bei der kein nennenswertes Risiko für exponierte Personen besteht, Tumore in den oberen Atemwegen zu entwickeln und kann somit als tolerierbare Luftkonzentration angesehen werden. [34]

3 Emissionsquellen für Formaldehyd

Schadstoffe können sowohl primär (direkt) als auch sekundär (indirekt) emittiert werden. Dabei zählen unvollständige Verbrennungsprozesse als Hauptquelle für direkt emittiertes Formaldehyd. Dies sind überwiegend Emissionen in Städten durch Kraftfahrungsverkehr und Feuerungsanlagen, welche die Konzentration an Formaldehyd erhöhen. Von Kraftfahrzeugen wird hauptsächlich Formaldehyd mit einem Anteil von bis zu 50% an der Gesamtmenge der Aldehyde emittiert. Methanolbetriebene Fahrzeuge stoßen bis zu 400% mehr aus als Fahrzeuge mit herkömmlichen Kraftstoffen. Dadurch haben die Abgase ein höheres Ozonbildungspotential. Zudem findet Formaldehyd auch in vielfältiger Weise Einsatz in der Kunststoffverarbeitung oder in Konservierungs- und Desinfektionsmitteln, welche zu einer direkten Emission führen. Auch die Bildung von Aldehyden durch Verbrennung von Biomasse kann als bedeutend angesehen werden. [16] S.32 Die nachfolgende Abb. 2 gibt einen Überblick über die weltweite Schadstoffverteilung der direkten und indirekten Emissionen.

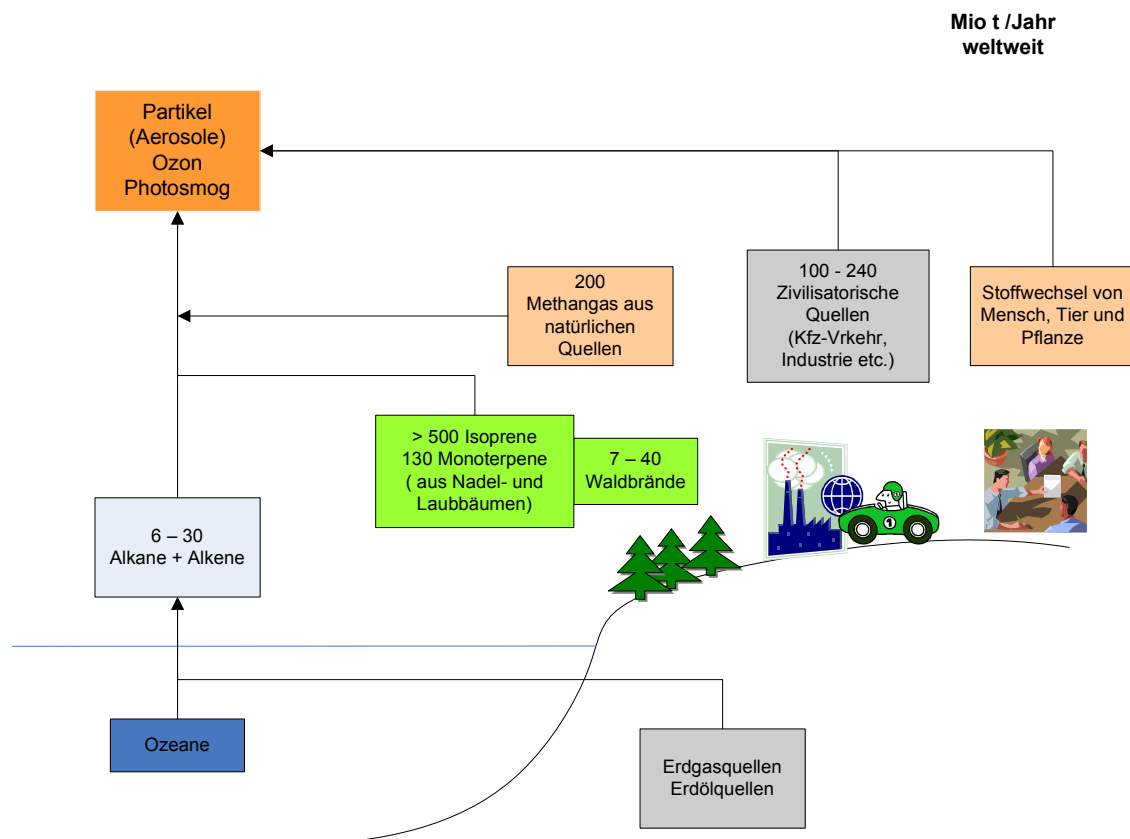


Abb. 2: Weltweiter Schadstoffausstoß von Formaldehyd

Im Gegensatz zu den primären Schadstoffen werden die sekundären Schadstoffe nicht direkt freigesetzt, sondern entstehen erst in der Luft. Die wichtigste sekundäre Quelle ist die Oxidation von Kohlenwasserstoffen. Laut einer Studie sind 70% des in der Atmosphäre vorhandenen Formaldehyds durch sekundäre Emissionen verursacht. Da dieses überwiegend aus dem Abbau von Kohlenwasserstoffen in die Atmosphäre gelangt, werden besonders in Städten hohe Formaldehydkonzentrationen gemessen. [16] S.32

3.1 Natürliche Emissionsquellen

Als natürliche Quellen werden die Emissionsquellen verstanden, welche das Formaldehyd nicht durch zivilisatorische Tätigkeiten in die Umwelt einbringen, sondern natürlichen Ursprungs sind. Alkene bilden dabei wichtige Vorläufer für Aldehyde, da ihre Lebensdauer in der Atmosphäre kurz ist, so dass ihr Abbau effizient zur Produktion von Formaldehyd führen kann. Deshalb emittieren Pflanzen und Früchte Formaldehyd in geringen Mengen. Die am häufigsten von Pflanzen emittierten Kohlenwasserstoffe sind Isoprene (C_5H_8) und Monoterpene ($C_{10}H_{16}$) mit Lebensdauern von Minuten bis Stunden. Diese kommen in Laubbäumen sowie Nadelbäumen vor. Durch den photochemischen Abbau von Isopren sowie Monoterpen entsteht schließlich Formaldehyd. [23] S.71, [27] S.43f Natürliche Emissionen von Formaldehyd entstehen auch bei der Photooxidation in der Atmosphäre, bei Bränden (insbesondere Waldbränden) sowie durch Erdöl- und Ergasfelder. Zusätzlich werden Emissionen durch den Stoffwechsel von Mensch, Tier, Pflanze und Mikroorganismen sowie die Verwesung und Vermoderung von tierischer und pflanzlicher Substanz frei. Eine exakte Menge an natürlichen Formaldehydemissionen ist schwer zu ermitteln. In der Literatur sind daher eher divergierende Angaben zu finden. Im großräumigen sowie globalen Maßstab betrachtet erweist sich die Menge an Emissionen als sehr hoch. Lokal kritische Immissionskonzentrationen werden jedoch nur in besonderen Fällen z.B. bei Bränden erreicht. [8] S.57, [30] S. 7.16

Im Allgemeinen kann man die Konzentration der natürlichen Quellen als Hintergrundkonzentration in der Atmosphäre angeben, da Formaldehyd ein ubiquitärer Stoff ist und überall auf der Erde bis zu einigen Hundert ppt verteilt ist. Dieser Wert wird dabei immer auf die Konzentration in Reinluftgebieten ohne zivilisatorischen Einfluss betrachtet. Messungen zeigten, dass diese Hintergrundkonzentration für Formaldehyd in der Außenluft 5-200 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ beträgt. In der Raumluft liegen die Werte dagegen zwischen 30-80 $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Diese Hintergrundkonzentration wurde über die Konzentration von Formaldehyd

oder seiner Metabolite in biologischem Material gemessen, die bei einer Population ohne bekannte spezifische Exposition vorgefunden wurden. Täglich werden ca. 1,5-15 mg Formaldehyd dem Körper über Lebensmittel zugeführt. Zur Hintergrundbelastung trägt auch die endogene Bildung, d.h. die Bildung von Stoffwechselprodukten im Körper bei. [39]

3.2 Anthropogene Emissionsquellen

Die anthropogenen Emissionsquellen sind im Gegensatz zu den natürlichen Quellen durch menschliche Einflüsse bedingt. Die nachfolgende Abbildung gibt einen Überblick über die vorhandenen Emissionsquellen von Formaldehyd, wobei insbesondere die anthropogenen Emittenten relevant sein sollen.

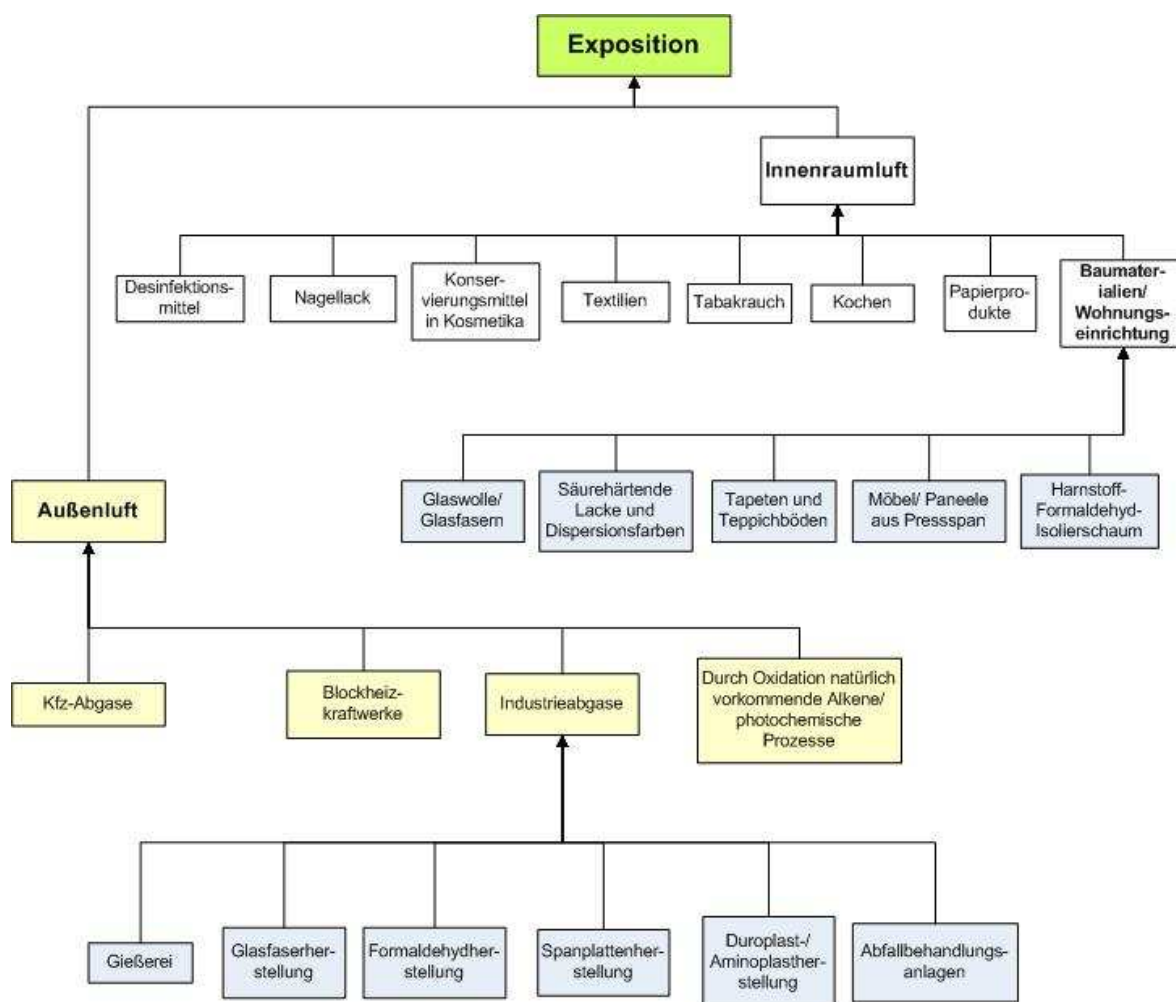


Abb. 3: Überblick über die Emissionsquellen von Formaldehyd

Aufgrund der immensen Anzahl an Emittenten unterliegt dieses Flussdiagramm nicht der Vollständigkeit. Es wurde sich dabei lediglich auf die wichtigsten Emissionsquellen beschränkt.

Formaldehyd wird technisch in sehr großer Menge hergestellt und verwendet. Die Anwendungsbereiche sind dabei vielfältig und erstrecken sich vom Desinfektionsmittel und der Konservierung (Formalin-Lösung, Kosmetika) bis zur Herstellung von Spanplatten, Klebern, Aminoplast-Ortsschäumen, Lacken, Farben, Holzschutzmitteln usw.. Die in Werkstoffen eingesetzten Binde- und Klebemittel werden unter Beteiligung von Formaldehyd hergestellt. Als kritisch sind vor allem Spanplatten und verleimte Holzwerkstoffe wie Schicht-Parkett oder Sperrholz zu sehen. Besonders auffällig sind harnstoffharzverleimte Spanplatten. Diese Materialien geben fortlaufend, vor allem bei Zutritt von Feuchtigkeit/ Luftfeuchtigkeit Formaldehyd ab. Dies geht im Extremfall so lange, bis kein aus Formaldehyd hergestelltes Material mehr vorhanden ist und die Spanplatte zerfällt. [16] S. 74

Eine weitere wichtige Quelle für die Emission von Formaldehyd sind unvollständig ablaufende Verbrennungsprozesse. Diese finden sich in Verbrennungsmotoren von Kraftfahrzeugen und Blockheizkraftwerken, in Gießereien und bei der Herstellung von Kunststoffartikeln wie z.B. den so genannten POM-Materialien, wobei Formaldehyd als gasförmiges Nebenprodukt entsteht, wenn das Material verbrennt. Bei POM-Materialien ist der Formaldehydanteil bei der Verbrennung sehr hoch. Auch beim Rauchen entsteht auf diese Weise Formaldehyd, welches nicht unerheblich zur Belastung der Luft beiträgt. Im Gesamtverbrauch einer einzigen Zigarette finden sich etwa 1,5 mg Formaldehyd. [39] S. ix

Problematisch ist auch die Verbrennung von Holz in Kleinf Feuerungsanlagen, da hier durch unregelmäßige Beschickung oder feuchtes Holz die Verbrennung häufig unvollständig abläuft. Im Endeffekt entstehen in diesen, im Hausbetrieb eingesetzten Anlagen, wesentlich höhere Formaldehydgesamtemissionen als mit den wesentlich ergiebiger und sauberer arbeitenden industriellen Großfeuerungsanlagen, welche die Brennstoffe Gas, Öl und Kohle einsetzen. Dies ist mit dem hohen Ausbrand der Brennstoffe zu begründen. [5] S.59

Als weitere Emissionsquelle für Formaldehyd kann der Kfz-Verkehr angesehen werden. In Sachsen sind derzeit gemäß der Kfz-Statistik von 2009 2.405.706 Kraftfahrzeuge zugelassen, so dass durch die hohe Anzahl an Emittenten der Kfz-Verkehr die Hauptemissionsquelle für Formaldehyd darstellt. Dabei stoßen Diesel-Pkw mehr Formaldehyd aus als Benzinbetriebene Pkw. Die Industrie sowie die Blockheizkraftwerke

bilden ebenfalls eine große Verursachergruppe. Detaillierte Ausführungen erfolgen diesbezüglich im Abschnitt 4. Die natürlichen Emissionen sind dagegen als verschwindend klein anzusehen, da in Sachsen vorwiegend Formaldehyd über die Laub- und Nadelwälder sowie über Stoffwechselprozesse frei wird.

Aufgrund der Vielzahl an Emissionsquellen für Formaldehyd ist es im Rahmen dieser Arbeit nicht möglich, alle Anlagen bzw. Anlagentypen zu betrachten. Deshalb kommen im Folgenden nur einige Anlagen zur Auswahl.

Als selektierte anthropogene Emissionsquellen sind daher zu nennen:

- Blockheizkraftwerke von Kraft- und Heizwerken (mittels Erdgas betrieben),
- Blockheizkraftwerke von Agrarbetrieben (mittels Biogas betrieben),
- Blockheizkraftwerke von Deponien (mittels Deponiegas betrieben),
- Anlagen zur Spanplattenherstellung,
- Anlagen zur Formaldehydherstellung,
- Gießereien,
- Anlagen zur Duroplastherstellung,
- Anlagen zur Glasfaserherstellung.

3.2.1 Gießerei

Bei verschiedenen Gießereiprozessen werden Formaldehydemissionen verursacht. Deshalb ist es erforderlich die Verfahrensprozesse zu beschreiben, bei denen Formaldehyd freigesetzt wird.

Dabei gliedert sich der Gießereiprozess in folgende Haupttätigkeiten auf:

- Schmelzbetrieb: Schmelzen und Metallbehandlung
- Formerei: Herstellung der Formen und Kerne
- Gießerei: Gießen des flüssigen Metalls in die Form,
Abkühlung, damit das Metall erstarrt und das Gussteil aus
der Gießform herausgenommen werden kann
- Putzerei: Fertigbearbeitung des Rohgussteils.

Beim Gießereiprozess entstehen (metallhaltige) Mineralstäube, säurebildende Verbindungen, Produkte unvollständiger Verbrennung sowie flüchtige organische Verbindungen (VOC). Der Einsatz von Koks als Brennstoff oder die Beheizung der Tiegel und Öfen mit Gas- oder Ölbrennern kann zur Emission von Verbrennungsprodukten wie NO_x und SO_2 oder auch Formaldehyd führen.

Die Herstellung von Eisen-, Stahl- und Temperguss erfolgt überwiegend mit Formen aus Formstoffen oder durch den Einsatz organischer Bindersysteme. Bei der Kernherstellung werden die Kerne in Gussformen eingelegt, um Hohlräume oder komplizierte Konturen im Gussstück zu erzeugen. Sandkerne werden manuell (z.B. Handformen) oder maschinell (z.B. in Kernschießautomaten) hergestellt. In der Regel werden die Kerne mit einer Schlichteschicht überzogen, um glatte Gussoberflächen zu erhalten und eine Reaktion zwischen Formstoff und Metall zu verhindern. Sandkerne werden in der Regel aus chemisch gebundenen Sanden hergestellt. In den betrachteten Gießereien wurden die Verfahren „Kaltharz“ und „PUR-Coldbox“ verwendet. Die Art des eingesetzten Bindemittels entscheidet somit über die Zusammensetzung der organischen Emissionen. Bei der Herstellung von Formen und Kernen werden verschiedene Additive eingesetzt, um den Sand zu binden. Die Emission flüchtiger organischer Verbindungen ist unter anderem auf die Verwendung von Harzen, organischen Lösungsmitteln oder Beschichtungen auf organischer Basis bei der Form- und Kernherstellung zurückzuführen. Dabei werden insbesondere Harnstoff-Formaldehyd-Harze, Furfurylalkohol-Formaldehyd-Harze sowie Furan- bzw. Phenol-Formaldehyd-Harze während der Kernherstellung in heißen Kernkästen, dem so genannten Hot-Box-Verfahren verwendet. Beim Handformen erfolgt die Herstellung einer Sandform ohne Nutzung einer Form-

maschine. Der Mischvorgang und die Zufuhr von Formsand erfolgen in der Regel kontinuierlich über Durchlauf- oder Chargenmischer. Im Mischer werden Sand und das Bindemittel intensiv vermengt. Über den Gelenkarm des Mixers kann das Mischrohr von den Beschäftigten über die Formkästen geführt werden und diese befüllen. Der in die Formkästen verfüllte Sand wird dann per Hand verteilt und verdichtet. Expositionen gegenüber Formaldehyd bestanden in den Handkernmachereien beim Befüllen der Kästen, der Nacharbeit, dem Schlichten und den Reinigungsarbeiten. Die Höhe der Exposition ist dabei abhängig von der zu verarbeitenden Formsandmenge bzw. der Kerngröße. Bei den überwiegend manuellen Tätigkeiten besteht Hautkontakt mit dem Formsandgemisch und somit die Gefahr der Hautresorption und der Hautsensibilisierung. Im Gegensatz zur Handformerei gibt es noch das maschinelle Verfahren, das so genannte Cold-Box-Verfahren. Beim genannten Verfahren werden Kerne aus einer Mischung von Sand mit einem 2-Komponenten-Bindemittel (Phenol-Formaldehydharz und Polyisocyanat) hergestellt. Der Formstoff wird in der gekapselten Kernschießanlage in den Kernkasten geschossen und bei Raumtemperatur durch Begasen mit einem tertiären Amin (z.B. Triethylamin oder Dimethylethylamin) innerhalb von 2 bis 60 Sekunden durch Polyaddition ausgehärtet. Da das Amin nach Abschluss der Reaktion unverändert aus dem Prozess hervorgeht, müssen die Emissionen durch Lüftungstechnische Einrichtungen erfasst und abgeleitet werden. Häufig ist das mechanische Nacharbeiten nach dem Ausschalen der Kerne notwendig. Die nach der Fertigung entnommenen Kerne erreichen ihr Optimum an Festigkeit nach etwa 1-24 Stunden. Expositionen gegenüber Stäuben und gasförmigen Gefahrstoffen wurden im Bereich Maschinenkernmacherei (Cold-Box-Verfahren) bei Entnahme der Kernkästen aus der Anlage, der mechanischen Nacharbeit, den Reinigungsarbeiten und bei der Zwischenlagerung gefertigter Kerne im Arbeitsbereich registriert. Die Höhe der Exposition war dabei abhängig vom Anlagentyp, der Qualität der Lüftungstechnischen Erfassung, von der zu verarbeitenden Formsandmenge bzw. der Kerngröße, dem Durchsatz im Arbeitsbereich, dem Umfang der erforderlichen Nacharbeiten an den Kernen und dem Ort der Kernzwischenlagerung.

Nach der Formherstellung schließt sich der Abguss an. In Abhängigkeit vom Formverfahren, dem Gussstückgewicht und der Seriengröße erfolgt der Abguss maschinell oder manuell. Beim Eingießen des Metalls werden die organischen Bindemittel des Sandes durch Thermolyse zersetzt und dann während des Ausrüttelns und Abkühlens freigesetzt. Es entstehen somit Emissionen beim Mischen, Lagern und Verarbeiten des Bindemittelsystems sowie auch bei der Handhabung mit der Formmasse. Beim Binden

des Sandes und beim Gießen des Metalls werden somit anorganische und organische Verbindungen sowie flüchtige organische Verbindungen wie Formaldehyd frei.

Beim Auspacken wird das teilweise noch heiße Gussteil (bis 700 °C) von seiner Form getrennt. Zur Trennung der Gussstücke vom Formsand werden in der Regel Ausschlagroste oder Auspackrinnen verwendet. Ein Kran setzt die geöffneten Formkästen auf das Rüttelrost. Vertikale Schwingbewegungen leeren den Kasten, Sand fällt durch das Rost, Gussstücke werden dem Rost entnommen oder über Transportbänder weitergeleitet. Der Formsand wird über Transportbänder der Wiederaufbereitungsanlage zugeführt. Durch die Zersetzung der Bindemittel beim Abguss und beim Abkühlen entsteht beim Auspacken ein Gemisch aus staub- und gasförmigen Gefahrstoffen komplexer Zusammensetzung, dessen Konzentration von den Einsatzmengen und Abkühlungsbedingungen abhängt. Durch starke thermische Auftriebsströmungen wird das beim Zerfall der Formen entstehende Stoffgemisch nach oben getragen und kann bei fehlender Kapselung bzw. fehlender Lüftungstechnischer Erfassung zu starken Raumluftbelastungen führen. Mit zunehmender Gussteilgröße wird die Erfassung und Ableitung von Emissionen problematischer.

Darüber hinaus werden nicht unerhebliche Mengen an Formaldehyd beim Transport und der Anwendung der hergestellten Formteile frei. Die Entstehung von Abbauprodukten setzt sich also auch während der Abkühlphase des Gussteils und bei der Entnahme aus der Form fort. Diese Produkte können zudem zu einer Geruchsbelästigung führen. Weitere Belastungen durch Geruch und Dämpfe treten in den Gießereien auf, wenn während des Abgusses die gehärteten Formteile Crackprodukte freisetzen. [29]

S. ii

Die nachfolgende Abbildung soll abschließend einen zusammenfassenden Überblick über die Prozessschritte in einer Gießerei geben.

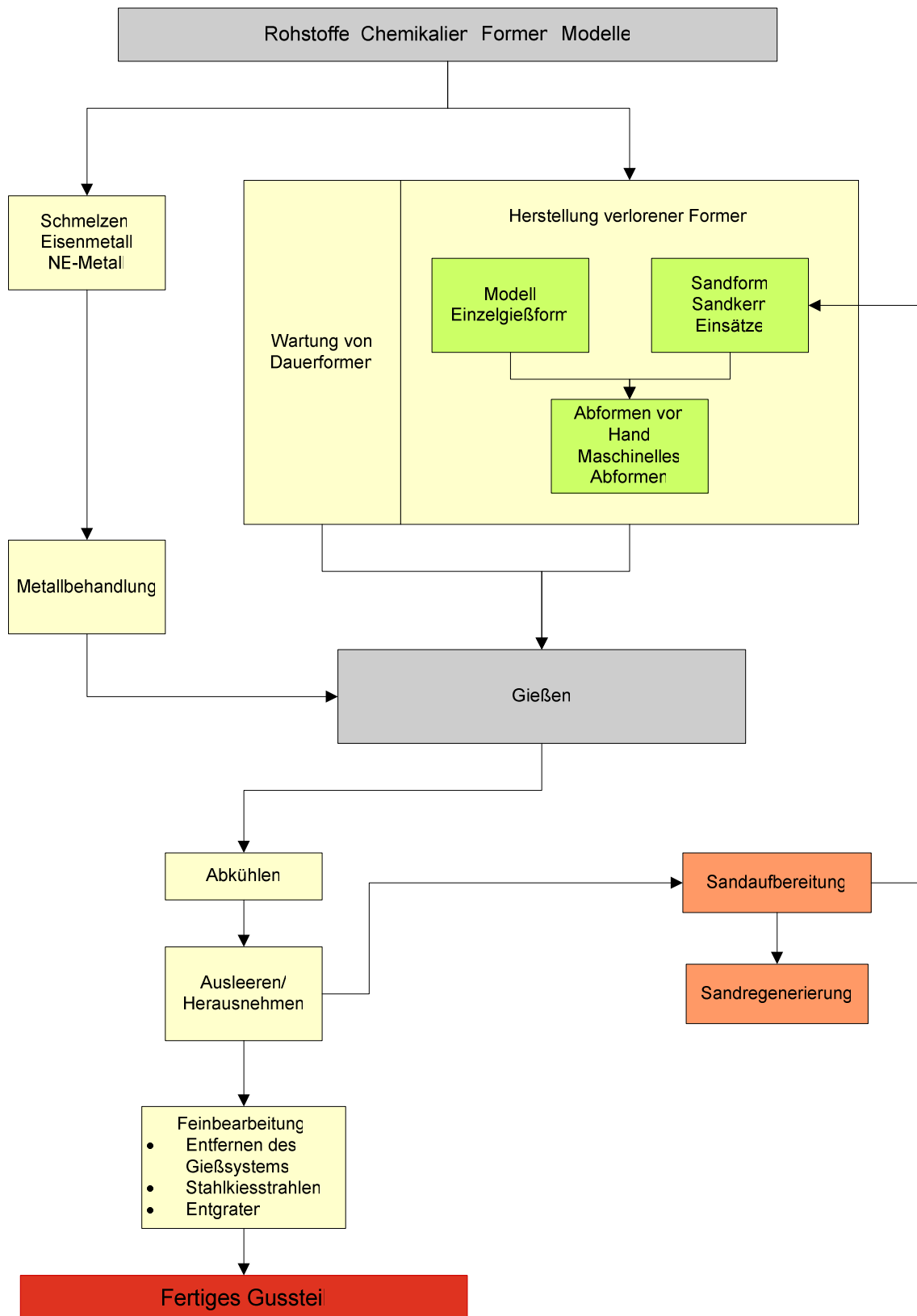


Abb. 4: Gießereiprozess

3.2.2 BHKW

Ein Blockheizkraftwerk ist eine modular aufgebaute Anlage zur Gewinnung von elektrischer Energie und Wärme, die vorzugsweise am Ort des Wärmeverbrauchs betrieben wird, aber auch Nutzwärme in ein Nahwärmenetz einspeisen kann. Dazu wird das Prinzip der Kraft-Wärmekopplung eingesetzt. Übliche BHKW-Module besitzen eine elektrische Leistung zwischen 5 kW und 5 MW. Der Antrieb kann vom Diesel- oder Gasmotor bis hin zur Gasturbine oder Brennstoffzelle reichen. Als Kraftstoffe kommen vorwiegend fossile oder regenerative Kohlenwasserstoffe wie Heizöl, Pflanzenöl, Biodiesel, Erdgas oder Biogas (für einen Ottomotor, Zündstrahlmotor oder eine Gasturbine) zum Einsatz, daneben auch Holzhackschnitzel und Holzpellets als nachwachsende Rohstoffe in Stirlingmotoren, Dampfkraftanlagen und Holzvergasern mit externer Verbrennung bzw. Pyrolyse. [24] S. 13-14

Das Arbeitsprinzip eines Blockheizkraftwerks ist in Abb. 5 verdeutlicht.

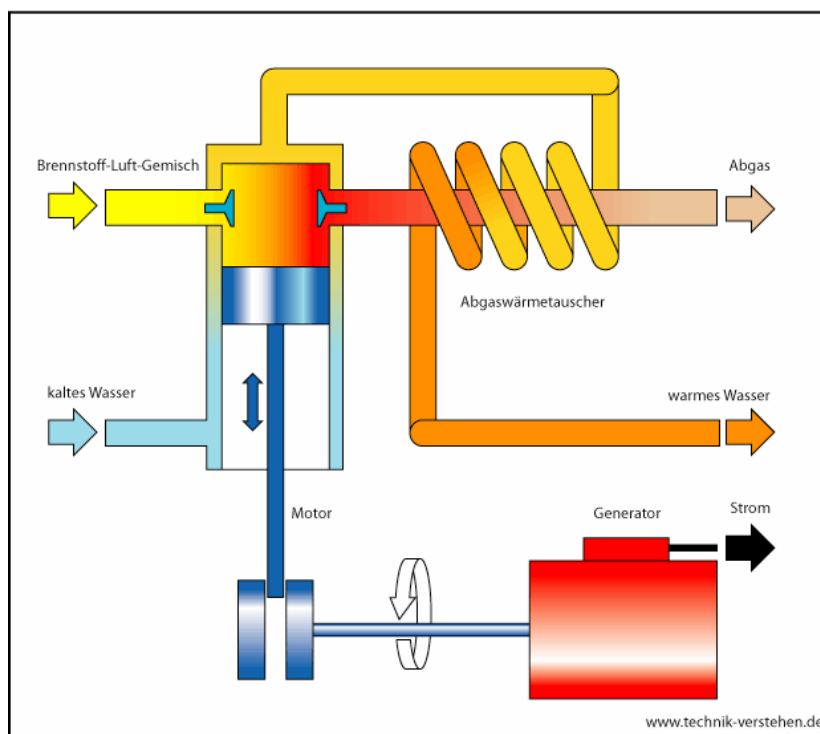


Abb. 5: Funktionsweise eines BHKW [47]

Nach Untersuchungen von Bauer TU München kann die Formaldehydbildung in den BHKW auf die Verbrennung von Kohlenwasserstoffen zurückgeführt werden. Dabei entsteht, wie in Abb. 6 dargestellt ist, Formaldehyd als stabiles Zwischenprodukt, welches bei einer vollständigen Verbrennung mit Temperaturen von mehr als 1200K rasch

3.2.3 Spanplattenherstellung

Die Herstellung von Spanplatten erfolgt aus Holzspänen mit Harnstoff-Formaldehyd-Leimharzen durch Pressen bei hoher Temperatur. Zur Beschleunigung der Kondensationsreaktion werden so genannte Härter verwendet.

Als kritisch sind dabei die Bindemittelharze, welche nicht nur die Umwelt, sondern auch die menschliche Gesundheit schädigen können. In 90% der Fälle werden als Bindemittel formaldehydhaltige Kunstharze verwendet, die mit den Holzspänen keine dauerhafte Verbindung eingehen. Generell kommen dabei Harnstoff-Formaldehyd-Harze oder Phenol-Formaldehyd-Harze zum Einsatz. So gasst Formaldehyd ununterbrochen aus den Spanplatten aus und belastet die Raumluft. Das Gas entweicht, solange die Spanplatte existiert. Erst wenn die Platten selbst zerfallen, besteht keine Gesundheitsgefahr mehr. Das Gas entweicht vorwiegend an nicht verklebten oder zusätzlich geschützten Sägeschnitten und Bohrlöchern. [31], [41]

3.2.4 Duroplastherstellung/-verarbeitung

Bei Duroplasten ordnen sich die Monomere räumlich vernetzt an. Es entsteht eine vernetzte dreidimensionale Struktur. Diese macht die Duroplaste zu einem harten, glasartigen Polymerwerkstoff. Um die Moleküle miteinander vernetzen zu können, ist es erforderlich, ein zweikomponentiges Harzsystem zu verwenden. Der Kunststoff wird dadurch dünnflüssig, was sich für die Benetzung der Fasern als ideal erweist. Je nach Harzsystem und Temperatur variiert die Verarbeitungszeit und die anschließende Aushärtungszeit stark. Die Härtung erfolgt entweder thermisch durch Temperaturerhöhung oder chemisch mittels Katalysator. Typische Duroplaste sind Phenolplaste (Phenol-Formaldehyd), Aminoplaste (Harnstoff-Formaldehyd und Melamin-Formaldehyd), ungesättigte Polyesterharze sowie Epoxidharze. Den exakten Herstellungsprozess der Duroplaste veranschaulicht die Abb. 7. [32]

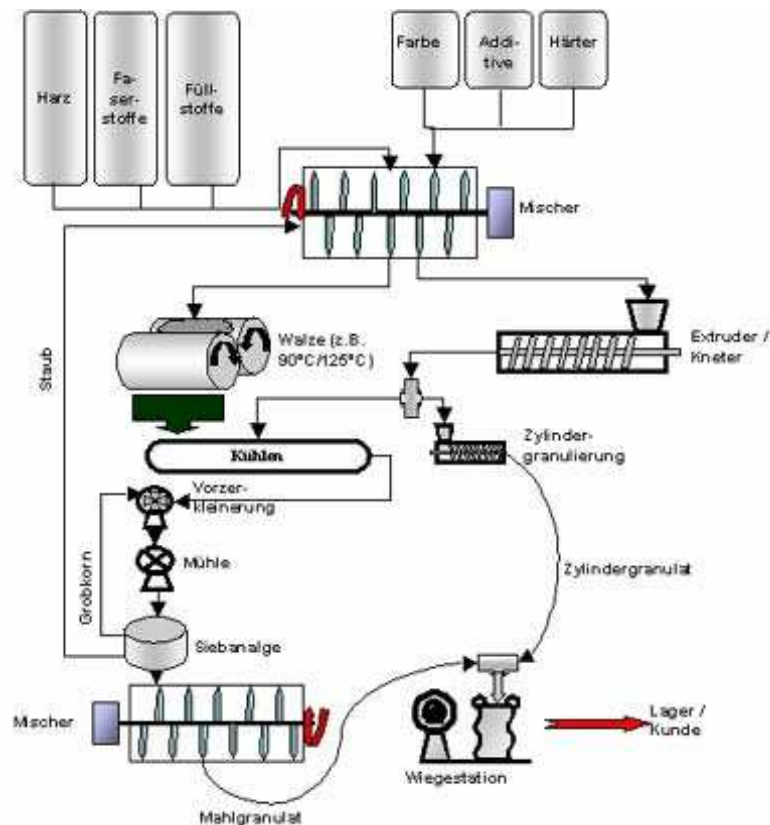


Abb. 7: Duroplastherstellung [32]

Die Verarbeitung von Kunstharz erfolgt häufig im Gussverfahren. Hierbei wird das Gießharz in eine wiederverwendbare oder eine verlorene Form gegossen. Die Emissionen werden somit durch die Ausdünstung des Harzsystems frei. [32]

3.2.5 Glasfaserherstellung

Bei der Herstellung von Glasfasern dienen als Grundstoffe die Materialien Quarzsand, Soda und Kalkstein unter Zugabe von ca. 60 – 70% Altglas. Die Stoffe werden eingeschmolzen und anschließend zu Fasern geschleudert. Zur Erhaltung der Formstabilität erfolgt eine Zugabe von 7% Kunstharz (Phenol – Formaldehyd - Harz) als Binder zu den Fasern, welche als Dämmstoff vorliegen. Anschließend wird der Mineralwolle-Dämmstoff im Heißluftstrom unter Freigabe von Formaldehyd ausgehärtet. Generell entweichen aus den Glasfasermatten kontinuierlich Formaldehydemissionen. [33]

4 Emissionskataster für Sachsen

„Ein Emissionskataster ist ein räumlich untergliedertes Verzeichnis von Emissionen, welche in einem definierten regionalen Gebiet über einen festgelegten Zeitraum abgegeben werden. Emissionskataster spiegeln jene Vorgänge wieder, die, bezogen auf den Ort des Geschehens, zu einer atmosphärischen Belastung führen.“ [25] S.9

4.1 Methodik und Darstellung

Die Darstellung von der Art, der Menge, der räumlichen und zeitlichen Verteilung sowie den Austrittsbedingungen von Formaldehyd werden gemäß §46 des Bundesimmissionsschutzgesetzes in Emissionskatastern dargestellt. Somit können die Emissionen pro Jahr für die Anlagen oder ein Gebiet dargestellt werden. Die dafür erforderlichen Emissionsdaten können dabei den Emissionserklärungen, die nach §27 BImSchG die Betreiber einer genehmigungsbedürftigen Anlage abzugeben haben, entnommen werden. Es ist somit möglich über die entsprechenden Module der Behördendatenbank AIS-I die Emissionsraten abzufragen, da diese bereits in Emission pro Jahr berechnet vorliegen. [8] S.59

Sollten dennoch Anlagen betrachtet werden, bei denen diese Emissionsdaten nicht vorliegen, müssen diese auf einem anderen Weg berechnet werden. Zur Berechnung ist es notwendig den Emissionsfaktor des zu betrachtenden Schadstoffes und die Aktivität des eingesetzten Brennstoffes pro Jahr zu kennen. „Emissionsfaktoren quantifizieren die Emissionen in Relation zu den verursachenden Aktivitäten und erlauben den beurteilenden Vergleich der Emissionen verschiedener Anlagen. Darüber hinaus gestatten diese das Übertragen der Emissionsverhältnisse zwischen vergleichbaren Anlagen.“ [18] S.6

Emissionsfaktoren werden als das Verhältnis der Masse der Emissionen zu geeigneten, ausgewählten Bezugsgrößen angegeben. Bezugsgrößen können z.B. die Massen der Einsatzstoffe und Produkte, die Abgasmengen oder die Mengen der zugeführten bzw. umgewandelten Energien sein.

Den Emissionsfaktor kann man über die Berechnung:

$$\text{Emissionsfaktor} = \text{kg Formaldehyd} / \text{TJ Brennstoff}$$

oder

$$\text{Emissionsfaktor} = \text{kg Formaldehyd} / \text{Betriebsstunde der Anlage}$$

ermitteln. [51]

Letztere Berechnung wäre nur sinnvoll, wenn die Anlage immer mit der gleichen Leistung betrieben werden würde. Dies ist allerdings sehr unwahrscheinlich und wird deshalb als nicht sinnvoll angesehen. Des Weiteren muss die Aktivität des jeweiligen eingesetzten Stoffes bestimmt werden, indem man den Brennstoff/Jahr in TJ berechnet. Durch die Multiplikation von dem Emissionsfaktor und der Aktivität erhält man die für das Emissionskataster erforderlichen Emissionen in kg/a.

Zur Darstellung eines Emissionskatasters können generell 5 Methoden angewandt werden, die von A nach E hinsichtlich der statistischen Ungenauigkeit stark abnehmen.

Tab. 4: Methoden zur Darstellung eines Emissionskatasters [40]

Methode	Beispiel
A: Verwendung von Angaben der Anlagenbetreiber (Basis: kontinuierliche Messungen, wiederkehrende Messungen, Berechnungen, Schätzungen)	<ul style="list-style-type: none"> • SO₂, Staub, CO, NMVOC, NO_x aus Großfeuerungsanlagen • erklärte Emissionen der genehmigungsbedürftigen Anlagen
B: Erhebung im Untersuchungsgebiet und Hochrechnung auf Sachsen	NMVOC aus nichtgenehmigungsbedürftigen: <ul style="list-style-type: none"> • Druckereien • Lackierereien • Anlagen zur Metallbe- und -verarbeitung • Anlagen zur Holzbe- und -verarbeitung
C: Berechnung mit Hilfe von Emissionsfaktoren und Daten zum Verbrauch/Bestand	<ul style="list-style-type: none"> • NMVOC, Benzol, CO, CO₂, NO_x, SO₂ aus dem Straßenverkehr seit 1994 (komplexes Berechnungsverfahren) • NH₃ aus der Haltung von Vieh und dem Ausbringen von Wirtschaftsdünger (Basis: Viehbestand)

Methode	Beispiel
	<ul style="list-style-type: none"> • Benzol aus nicht genehmigungsbedürftigen Feuerungsanlagen (Basis: Energieträgerverbrauch) • NMVOC aus Haushalten (Basis: Einwohnerzahl, Haushaltsbefragung zur Verwendung lösemittelhaltiger Produkte)
D: Abschätzung mit Hilfe von einwohnerbezogenen Emissionsfaktoren	<ul style="list-style-type: none"> • CH₄ aus der Abwasserbehandlung
E: Abschätzung mit Hilfe von Expertenwissen	<ul style="list-style-type: none"> • NMVOC, CO, CO₂, NO_x, Staub, SO₂ aus dem Straßenverkehr 1990–1993

Im Rahmen meiner Arbeit beschränkte ich mich vorwiegend auf die Methode A aus der Tab. 4 zur Darstellung eines Emissionskatasters. Dabei wurden die Angaben der Anlagenbetreiber der erklärungspflichtigen Anlagen zur Erstellung des Katasters für den Freistaat Sachsen herangezogen. Diese Methode wurde gewählt aufgrund der hohen statistischen Genauigkeit der Ergebnisse, welche auf Messungen, Schätzungen bzw. Berechnungen beruhen. Somit konnten die Emissionen in kg/a direkt aus den Angaben der Anlagenbetreiber entnommen werden.

Darüber hinaus sollten die Methoden C bzw. E in Kombination Anwendung finden. Unter Zuhilfenahme von Expertenwissen von dem Institut für Gießereitechnik gGmbH sollten die entsprechenden Emissionsfaktoren für Formaldehyd für die jeweiligen Anlagentypen berechnet werden. Die Ermittlung der Emissionsfaktoren war jedoch nicht möglich, da derzeit keine aktuellen Emissionsfaktoren für Formaldehyd existieren. Zusätzlich war eine Berechnung über den Verbrauch an Brennstoff nicht möglich, da keine Angaben zum Brennstoffverbrauch bei den Anlagen existierten. Somit konnten die Methoden C und E entfallen, da es nicht möglich war entsprechende Ergebnisse aus Berechnungen bzw. vorgegeben Emissionsfaktoren zu erhalten.

Die Methode B bietet lediglich die Möglichkeit die NMVOC der nichtgenehmigungsbedürftigen Anlagen zu ermitteln. Dies würde allerdings keinen Aufschluss über die Emissionen von Formaldehyd geben. Daher konnte keine Erhebung im Untersuchungsgebiet und somit keine Hochrechnung auf Sachsen erfolgen.

Des Weiteren wurde die Methode D der einwohnerbezogenen Emissionsfaktoren als nicht sinnvoll angesehen, da ein Emissionsfaktor für Formaldehyd über die Einwohnerzahl im Freistaat Sachsen hätte erfolgen müssen. Die von Haushalten ausgehenden Formaldehydemissionen entstammen von privaten Holzfeuerungsanlagen. Da ich mich im Rahmen dieser Arbeit lediglich auf Industrieanlagen bzw. Blockheizkraftwerke beschränke, wäre diese Berechnung irrelevant für die Ergebnisse, so dass diese Methode keine Anwendung findet.

Um schließlich die Darstellung eines Emissionskatasters realisieren zu können, muss eine Einteilung der Emissionsquellen von Formaldehyd in Quellgruppen erfolgen. Für jede Quellgruppe gibt es bestimmte Emissionsfaktoren, da anlagenbedingt unterschiedliche Brennstoffe bzw. unterschiedliche Mengen an Brennstoff zum Einsatz kommen. Wie vorhergehend erwähnt ist der Brennstoffeinsatz abhängig von der Leistung, mit der die Anlagen betrieben werden. Es erfolgte eine Einteilung der Quellgruppen in 8 unterschiedliche Sektoren. Die in dieser Arbeit betrachteten Anlagentypen sind Gießereien und Blockheizkraftwerke, welche mit Biogas, mit Erdgas sowie mit Deponiegas betrieben werden. Darüber hinaus wurden Quellgruppen für Anlagen zur Herstellung von Formaldehyd, zur Herstellung von Span- und Faserplatten, zur Herstellung von Duroplasten sowie zur Herstellung von Glasfasern dargestellt. Die nachfolgende Tab. 5 veranschaulicht die Einteilung der Quellgruppen mit der zugehörigen Anzahl an Quellen.

Tab. 5: Anzahl der Quellen

Quellgruppe	Anzahl der Quellen
BHKW (Biogas)	33
BHKW (Erdgas)	50
Anlage zur Herstellung von Formaldehyd	5
Anlage zur Span- bzw. Faserplattenherstellung	4
BHKW (Deponiegas)	10
Gießereien	25
Anlage zur Herstellung von Duroplasten	2
Anlage zur Herstellung von Glasfasern	1
Gesamtanlagenanzahl	130

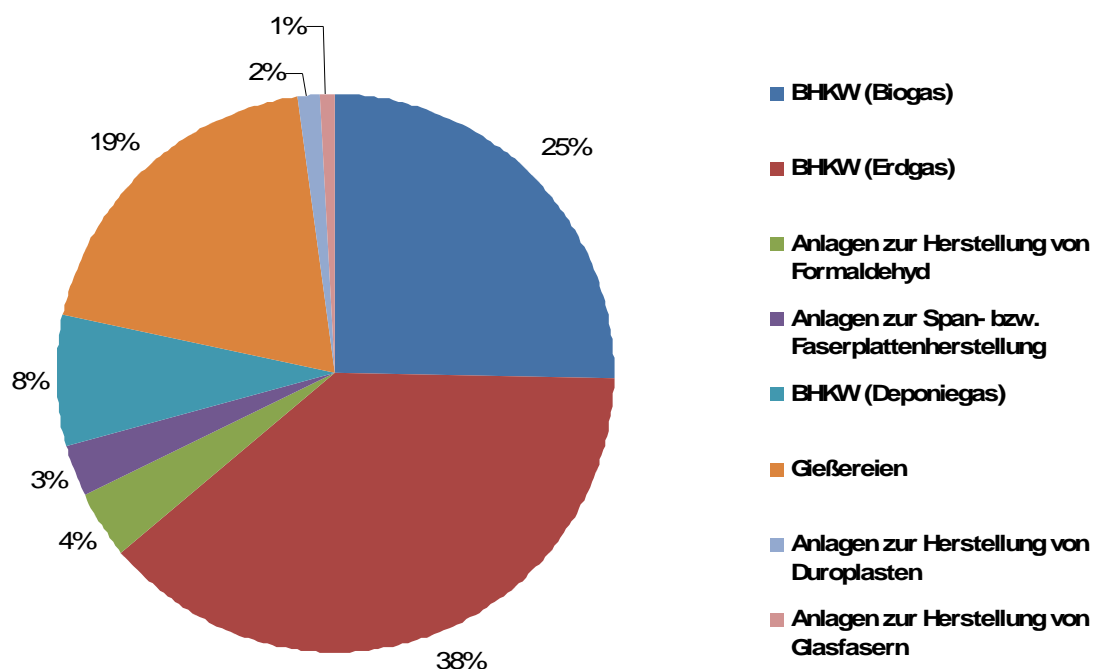


Abb. 8: Kreisdiagramm Quellgruppen für Formaldehyd

Das Kreisdiagramm in Abb. 8 zeigt, dass die mit Erdgas betriebenen BHKW den größten Anteil der Quellgruppen mit 38% besitzen. Daran anschließend bilden die mit Biogas betriebenen BHKW mit 25% die zweitgrößte und die Gießereien mit 19% die drittgrößte Gruppe. Diese Emittentengruppen von Formaldehyd machen somit den Großteil der Gesamtemission an Formaldehyd aus. Deshalb soll der Fokus auf diese Quellgruppen gerichtet werden, da sich hohe Formaldehydkonzentrationen dahingehend drastischer auswirken würden aufgrund der vielfachen Summation der Emissionen. Die restlichen Anlagen sind mit einem so geringen prozentualen Anteil an den Gesamtemissionen vertreten, so dass deren Emission im Verhältnis zu den biogas- bzw. erdgasbetriebenen BHKW sowie zu den Gießereien als relativ gering betrachtet werden kann.

Der Idealzustand eines Emissionskatasters beinhaltet alle Verursacher für Formaldehyd. Sowohl natürliche als auch anthropogene Quellen wie genehmigungsbedürftige und nichtgenehmigungsbedürftige Anlagen. Dies war im Rahmen dieser Arbeit allerdings nicht möglich, da in der Praxis nicht für alle Anlagen bzw. Schadstoffe wie Formaldehyd Emissionsfaktoren vorliegen. Da zusätzlich für nichtgenehmigungsbedürftige Anlagen bzw. teilweise genehmigungsbedürftige Anlagen der Brennstoffeinsatz nicht zu ermitteln war aufgrund fehlender Angaben in der AIS-I Datenbank, konnten die Aktivitäten der jeweiligen Brennstoffe ebenfalls nicht eruiert werden. Die Berechnung der Emissionsfaktoren für alle Anlagentypen hätte den Zeitaufwand für diese Arbeit überschritten, da bei jedem Anlagenbetreiber eine telefonische oder postalische Befragung bezüglich des Brennstoffeinsatzes in der entsprechenden Anlage hätte erfolgen müssen. Hinzukommend ist die sehr in Frage gestellte Bereitschaft der Anlagenbetreiber zur Herausgabe relevanter Daten. Somit bestand ausschließlich die Möglichkeit genehmigungsbedürftige Anlagen, bei denen entsprechende Messwerte vorlagen, zur Erstellung eines Emissionskatasters zu verwenden.

Nach Expertenwissen seitens des Instituts für Gießereitechnik gGmbH [52] liegt kein Emissionsfaktor für Gießereien vor, da Formaldehyd mengenmäßig eine untergeordnete Komponente in der Gießereiabluft darstellt und somit nur Messungen von einzelnen Anlagen vorliegen. Daraus ableitend können derzeit keine repräsentativen Emissionsfaktoren gebildet werden. Das Erscheinen von Formaldehyd hängt von vielen verschiedenen Gesichtspunkten ab, insbesondere vom verwendeten Bindertyp. Da dies analog für nichtgenehmigungsbedürftige Anlagen gilt, kann auch hierbei die Emissionsrate für Formaldehyd in kg/a nicht berechnet werden. Eine Bestätigung dieser Tatsache liegt zusätzlich von Frau Dr. Hausmann des Landesamtes für Landwirtschaft, Umwelt und Geologie vor. [51]

Zur Darstellung eines Emissionskatasters fanden die erklärungspflichtigen Anlagen Verwendung, bei denen die Emissionen in kg/a für Formaldehyd in der Datenbank AIS-I angegeben wurden. Erklärungspflichtige Anlagen sind Anlagen, welche genehmigungsbedürftig sind und der Abgabe einer Emissionserklärung unterliegen. Die erklärungspflichtigen Anlagen sind gemäß §6 11.BImSchV von der Erklärungsspflicht befreit, „[...] wenn von der Anlage auch unter Berücksichtigung vom Normalbetrieb abweichender Vorgänge nur in geringem Umfang Luftverunreinigungen ausgehen.“ [40] Sollte also der Grenzwert für Formaldehyd unterschritten sein, so müssen die Anlagenbetreiber für Formaldehyd keinen Nachweis und somit keine Messwerte liefern. Daher fehlten für einige genehmigungsbedürftige Anlagen entsprechende Formaldehydemissionsraten in [kg/a]. Für die genehmigungsbedürftigen Anlagen, bei denen keine Emis-

sionen in kg/a vorlagen, sondern nur die einmalig gemessene Formaldehydkonzentration, wurde der Mittelwert aus den vorhandenen Messwerten der restlichen genehmigungsbedürftigen Anlagen gebildet.

Wie vorhergehend erwähnt, ist es zur Erstellung eines Emissionskatasters notwendig die Emissionsraten in kg/a vorliegen zu haben. Generell könnten die Emissionsraten der jeweiligen Anlagen über die gemessenen Formaldehydkonzentrationen und die gemessenen Volumenströme nach folgender Gleichung berechnet werden:

$$\text{Emissionsrate [mg/h]} = \frac{\text{Emissionskonzentration [mg/m}^3\text{]} \times \text{Volumenstrom [m}^3\text{/h]}}{\text{Volumenstrom [m}^3\text{/h]}}$$

$$\text{Emissionsrate [kg/a]} = \text{Emissionsrate [mg/h]} \times 24 \times 365 / 1000 \times 1000$$

Infolge fehlender Volumenströme für Formaldehyd bei einigen Anlagen war es nicht möglich, die Emissionsraten zu berechnen. Deshalb mussten die von den genehmigungsbedürftigen Anlagen gebildeten Mittelwerte auf die restlichen genehmigungsbedürftigen Anlagen, bei denen keine Messwerte vorlagen, übertragen werden. Für die genehmigungsbedürftigen Gießereien wurde beispielsweise ein Mittelwert von 274,36 kg/a gebildet und auf die restlichen genehmigungsbedürftigen Gießereien in Sachsen übertragen. Entsprechender Vorgehensweise unterlagen die anderen Anlagentypen. Die nichtgenehmigungsbedürftigen Anlagen flossen in das Emissionskataster nicht mit ein.

Aus der Verwendung der gebildeten Mittelwerte bzw. den Messwerten der Formaldehydkonzentrationen für die Anlagen ergibt sich eine statistische Unsicherheit, da die restlichen genehmigungsbedürftigen Anlagen nur auf der Bildung von Mittelwerten basieren. Zudem wurden die Messungen an den Anlagen nicht kontinuierlich, sondern diskontinuierlich bzw. einmalig durchgeführt. Somit könnten auch Fehler bei der Messung entstanden sein, welche aufgrund des diskontinuierlichen Messverfahrens nicht erkannt worden sein könnten.

Zur Erstellung eines Emissionskatasters sind lediglich die Emissionen in kg/a relevant. Nach dem Vorhandensein aller notwendigen Emissionsdaten kann die Erstellung eines solchen Katasters in Microsoft Excel oder für eine Kartendarstellung in ArcGIS-ArcView erfolgen. Im Rahmen dieser Arbeit findet das letztere Programm Anwendung, um die Gesamtemissionen der Anlagen in Sachsen anschaulicher zu gestalten. Da ArcView viele Softwareprogramme beinhaltet, wurde insbesondere ArcMap sowie ArcCatalog

benutzt. ArcMap stellt die Hauptanwendung von ArcGIS9.0 dar. ArcCatalog fungiert somit nur als Ergänzung zu ArcMap, indem es der Organisation, Betrachtung und Verwaltung von raumbezogenen Daten dient. Diese beiden Programme arbeiten somit eng zusammen und sind vollkommen aufeinander abgestimmt. Um das Emissionskataster schließlich erstellen zu können, war es notwendig, zuerst eine Karte für Sachsen mit den zugehörigen Landkreisen vom Stand 2008 als Layer in die Benutzeroberfläche einzufügen. Diese Karte wurde aus der ArcSDE-Datenbank des ArcGIS geladen. Zur Einordnung der Datenbank in das GIS-System dient nachfolgende Abb. 9. In dieser Datenbank sind sämtliche Geobasisdaten (Vektor- und Rasterdaten) sowie Geofachdaten der Fachbereiche des Landesamtes für Umwelt, Landwirtschaft und Geologie enthalten.

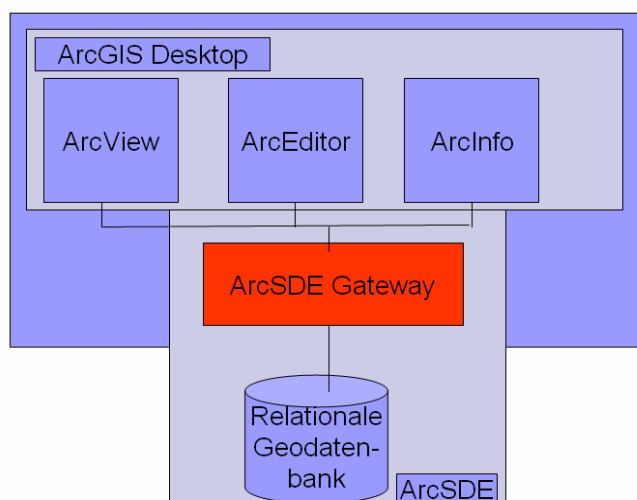


Abb. 9: Einordnung der ArcSDE-Datenbank [21]

ArcSDE (Spatial Data Engine) bildet die Schnittstelle zwischen den ArcGIS Klienten (PC eines GIS Nutzers) sowie den relationalen Datenbankmanagementsystemen. ArcSDE speichert die Daten innerhalb der Datenbank in Tabellen und organisiert den Datenimport sowie das Lesen der Daten. Im ArcSDE sind verschiedene Instanzen konfiguriert. Es wurde die Instanz GISV verwendet, welche Vektordaten (Geobasisdaten) für die Nutzung bereitstellt. Die Instanz GISV beinhaltet ATKIS-DLM25, ALK sowie VÜK200. ATKIS-DLM25 ist dabei das Amtliche Topographisch-Kartographische Informationssystem, ALK bildet die automatisierte Liegenschaftskarte und VÜK200 ist die Verwaltungsgrenzenübersichtskarte auf dem Stand von 2006. [21], [22]

Anschließend wurde eine Excel-Tabelle erstellt, in der sich die Namen der selektierten Anlagen, die zugehörigen Emissionsraten in kg/a, die Hoch- und Rechtswerte der Emissionsquellen sowie die entsprechende Zuordnung zur jeweiligen Anlagenspezifikation befanden. Diese Excel-Tabelle wurde als weiterer Layer der Benutzeroberfläche hinzugefügt und liegt dort in Form einer Attributetabelle vor, welche gegebenenfalls aufgerufen werden kann. Die Anlagen konnten über die Gauß-Krüger-Koordinaten der Sachsenkarte entsprechend raumbezogen zugeordnet werden. Über die Einstellungen in den Eigenschaften „Symbologie“ war es möglich, die Aufsplittung der Emissionsraten durch Klassifikation in 5 Bereiche vorzunehmen. Somit war es möglich die Größen der Emissionsraten visuell darzustellen, wobei der größte Kreis mit der größten Emissionsrate sowie der kleinste Kreis mit der kleinsten Emissionsrate gleichzusetzen ist. Des Weiteren erfolgte eine Unterteilung nach Anlagenspezifikation durch die Kennzeichnung mit einer unterschiedlichen Farbgebung. Vorhergehend erfolgte eine Zuweisung der Anlagentypen, welche in der zugehörigen Attributetabelle in die Anlagennummern von 1 bis 8 aufgeteilt wurden, zu den jeweiligen Farben. Als letzter Schritt wurde der Maßstab festgelegt sowie eine Legende erstellt. Das Emissionskataster für Formaldehyd für den Freistaat Sachsen ist nachfolgend in Abb. 10 dargestellt.

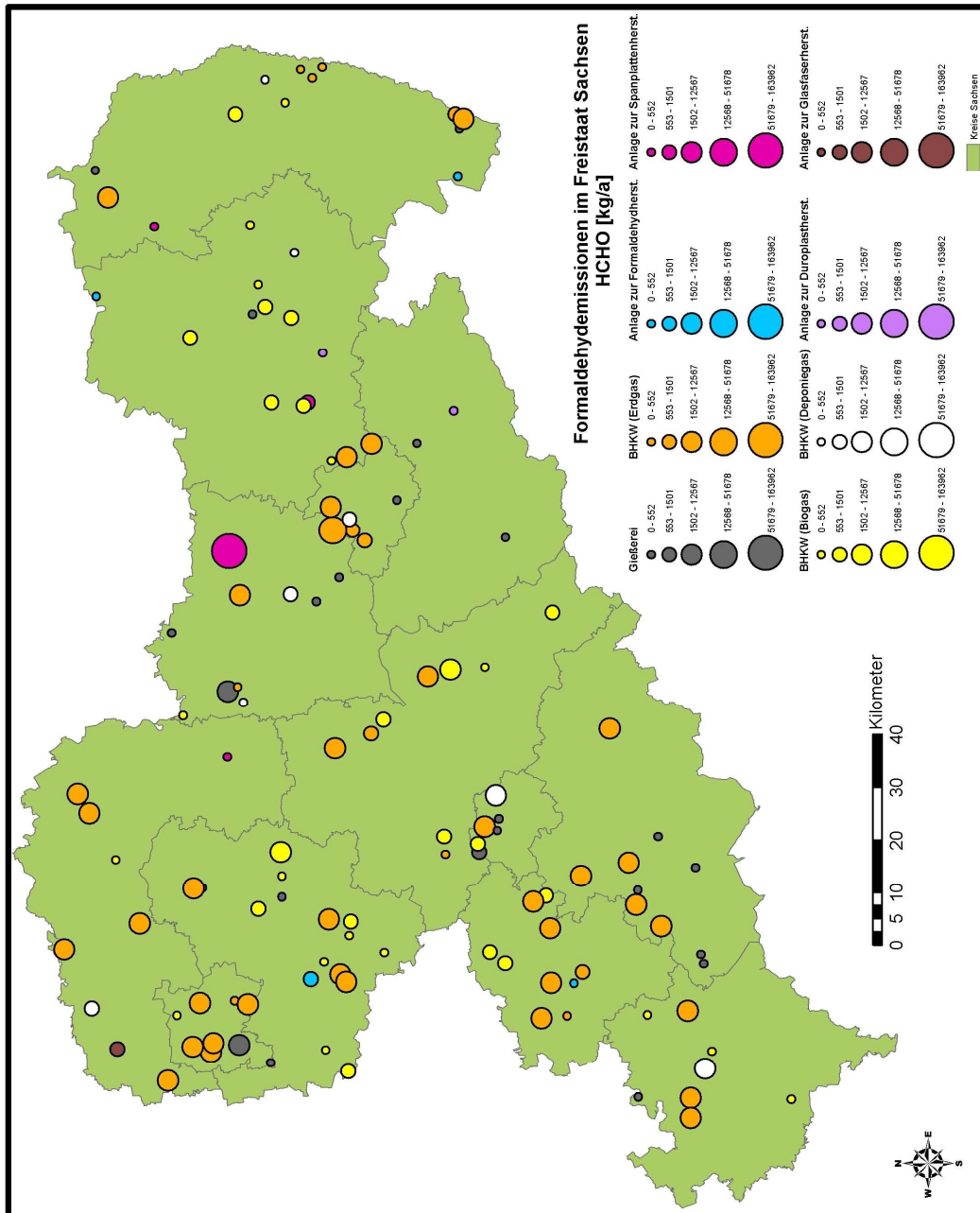


Abb. 10: Emissionskataster für Formaldehyd im Freistaat Sachsen

4.2 Bewertung des Emissionskatasters für Sachsen

Insgesamt wurden 130 Anlagen zur Erstellung des Emissionskatasters für Sachsen zur Beurteilung herangezogen. In diesem Kataster wird, wie im Abschnitt 4.1 bereits erwähnt, deutlich, dass die BHKW, welche mit Erdgas sowie mit Biogas betrieben werden, die größten Verursachergruppen darstellen. Diese sind über das gesamte Gebiet im Freistaat Sachsen verteilt und mit einer Anzahl von insgesamt 83 Anlagen vertreten, wobei dies 33 biogasbetriebene BHKW und 50 erdgasbetriebene BHKW sind. Im Freistaat Sachsen sind derzeit 139 Biogasanlagen genehmigt. Für das Emissionskataster wurden allerdings nur 33 mit Biogas betriebene BHKW betrachtet, da nur für diese Anlagen entsprechende Messwerte vorlagen. Für die anderen Anlagen hätte lediglich eine Standortspezifikation erfolgen können, jedoch wäre eine Größenzuordnung nach der Emissionsrate in kg/a nicht möglich gewesen. Deshalb mussten 106 biogasbetriebene BHKW für die Darstellung entfallen. Aus dem Emissionskataster ist jedoch zu erkennen, dass die Molkereigenossenschaft Hainichen, bezogen auf biogasbetriebene BHKW, die größten Formaldehydemissionen mit 11163,75 kg/a ausstößt. Generell liegen die Emissionsraten der biogasbetriebenen BHKW im Durchschnitt bei ca. 200 kg/a. Bei den erdgasbetriebenen BHKW liegen die Werte fast alle im Bereich von ca. 2000 kg/a.

Die unterschiedlich hohen Formaldehydkonzentrationen sind mit der Qualität des Verbrennungsprozesses zu begründen. Zu geringe Brennraumtemperaturen im Bereich von 400-800 K im Blockheizkraftwerk bewirken kalte Brennraumzonen sowie Totzonen für die Oxidation im Verbrennungsmotor. Das Resultat wäre eine Teiloxidation des Methans und somit eine erhöhte Formaldehydkonzentration aufgrund der intermediären Bildung von Formaldehyd bei der Methanoxidation. Zusätzlich könnten die Wartungsintervalle einen Einfluss auf die Formaldehydkonzentration haben. Dieser Einfluss wird derzeit in einem Forschungsvorhaben der HTW Dresden untersucht. Momentan war lediglich feststellbar, dass sich aus großen Zeitabständen zwischen den Wartungen auch erhöhte Formaldehydkonzentrationen bei den durchgeführten Messungen ergaben.

Die Gießereien sind mit 19% vertreten. Bei diesen 25 Anlagen mussten ebenfalls die Anlagen entfallen, bei denen keine Messungen vorgenommen wurden. Wie auf dem Kataster ersichtlich ist, emittieren die Gießerei Leipzig mit 2425 kg/a sowie die Stahlwerke Riesa mit 12567,08 kg/a das meiste Formaldehyd, bezogen auf die Gießereibranche. Der gebildete Mittelwert für die Gießereien liegt bei ca. 270 kg/a. Das Verfahren der Mittelwertbildung und das Übertragen auf die restlichen genehmigungsbedürftigen Gießereien musste, wohlwissend dass diese Vorgehensweise falsch ist und zu ei-

ner erheblichen Verfälschung der Ergebnisse führt, vollzogen werden aufgrund der fehlenden Angaben der Produktionsdaten von den entsprechenden Gießereien. Somit bestand ausschließlich die Möglichkeit über die Mittelwertbildung die restlichen Gießereien in das Emissionskataster zu integrieren. Von den insgesamt 25 Gießereien wurden 20 Emissionsraten zur Mittelwertbildung verwendet und auf die 5 restlichen Emittenten übertragen. Wie bereits erläutert, wird es als sinnvoller angesehen, die Emissionsfaktoren für Formaldehyd im Bereich der Gießereibranche über die Produktionsmengen zu ermitteln. Im Allgemeinen entsteht Formaldehyd während des gesamten Gießereiprozesses. Bereits im Bereich der Gießerei wird Formaldehyd durch die unvollständige Verbrennung von Koks frei. Anschließend wird es in der Kernherstellung in Form eines organischen Bindersystems verwendet, um den Sand zur Herstellung der Formen zu binden. Die Höhe der Formaldehydkonzentrationen ist somit abhängig von der verarbeiteten Formsandmenge sowie der Kerngröße. Während des Prozessschrittes Abguss erfolgt die Thermolyse des organischen Bindemittelsystems (z.B. Harnstoff-Formaldehyd-Harz), so dass beim Abkühlen des Gussstückes bzw. beim Ausrütteln des Formsandes Formaldehyd emittiert. Die großen Formaldehydemissionsraten der beiden oben genannten Gießereien sind mit enorm hohen Volumenströmen der Anlagen zu begründen, da die Emissionskonzentrationen von der Gießerei in Leipzig mit $0,29 \text{ mg/m}^3$ und der Gießerei in Riesa mit $3,3 \text{ mg/m}^3$ als eher gering einzustufen sind.

Die 5 Anlagen in Sachsen, welche Formaldehyd, Formmassen bzw. Hilfsmittel für die Textilveredelung herstellen, emittieren relativ wenig Formaldehyd. Die Anlage in Espenhain emittiert dabei am meisten mit 1223 kg/a . Der gebildete Mittelwert für die Anlagen zur Formaldehydherstellung beträgt 276 kg/a . Widererwartend können diese Anlagen dennoch in den weiteren Ausführungen vernachlässigt werden.

Bei den Anlagen zur Span- bzw. Faserplattenherstellung weist das Werk in Lampertswalde die meisten Emissionen mit $163962,3 \text{ kg/a}$ auf. Damit wird ersichtlich, dass dieser Wert den Spitzenwert für alle Anlagen in Sachsen darstellt. Da es lediglich 4 Anlagen in Sachsen gibt und die restlichen Werke zur Herstellung von Faserplatten nicht so viel Formaldehyd emittieren, gilt es Maßnahmen zu finden, wie speziell bei der Anlage in Lampertswalde die Formaldehydemissionsraten zu senken sind. Dies könnte sich allerdings als schwierig erweisen, da dieses Unternehmen bereits über eine geeignete Abluftreinigungsanlage nach dem derzeitigen Stand der Technik verfügt. Die hohen Formaldehydemissionsraten resultieren lediglich aus den hohen Abluftströmen bei der Produktion der Spanplatten.

Von den 10 BHKW, welche mit Deponiegas betrieben werden, hebt sich lediglich ein Wert besonders ab. Dies ist eine Deponie in Chemnitz mit $3043,23 \text{ kg/a}$. Generell lie-

gen die Emissionsraten zwischen 80 – 3043 kg/a, wodurch sich ein hoher Mittelwert von 970,93 kg/a ergibt. Dennoch sind die Emissionen im Verhältnis zu den anderen Anlagentypen als eher gering anzusehen, da 3 hohe Emissionsraten bei lediglich 10 BHKW, welche mit Deponiegas betrieben werden, bereits einen hohen Mittelwert ergeben.

Die Anlagen zur Herstellung von Duroplasten machen einen geringen Anteil an den Gesamtemissionen mit lediglich 2 Anlagen aus. Zur Glasfaserherstellung ist ebenfalls nur 1 Anlage im Emissionskataster für Sachsen zu verzeichnen, welche Formaldehyd emittiert. Die Emissionsraten für Formaldehyd sind allerdings für diese Anlagentypen vernachlässigbar gering, weshalb diese Anlagentypen in den nachfolgenden Ausführungen keine Betrachtung findet.

Generell dient die Erstellung eines Emissionskatasters der Verwaltung und Dokumentation von emissionsrelevanten Daten und beinhaltet Informationen zu den einzelnen Emittenten. Deshalb sollen Emissionskataster im Wesentlichen zu einem besseren Verständnis von Ursache, Quelle, Ausmaß sowie Wirkung von Emissionen beitragen. Des Weiteren können die darin enthaltenen Informationen zur Unterstützung der öffentlichen Meinungsbildung für die Bevölkerung über den Schadstoff Formaldehyd genutzt werden. Darüber hinaus ermöglichen Emissionskataster die Umsetzung gezielter Maßnahmen zur Reduktion von Formaldehyd, womit diese zur Luftreinhaltung beitragen.

Das nun vorliegende Emissionskataster dient als grundlegende Quelle für weiterführende Ausbreitungsrechnungen mittels LASAT 3.0. Es ist somit möglich über eine Verknüpfung der Emissionsdaten und des nachfolgenden Schadstoffausbreitungsmodells die flächenhafte Immissionssituation für das Untersuchungsgebiet Sachsen abzuleiten.

5 Abbau von Formaldehyd in der Atmosphäre

Um das Verhalten und den Abbau von Formaldehyd in der Atmosphäre verstehen zu können, ist es erforderlich, Kenntnisse über die Chemie der Troposphäre bzw. Stratosphäre zu besitzen, wobei die Stratosphäre in diesem Zusammenhang eine eher untergeordnete Rolle einnimmt. Deshalb soll im Folgenden eine kurze Einführung in die Atmosphärenchemie gegeben werden. Dies dient dazu, die Arbeit und ihre Bedeutung in einem Gesamtkontext begreiflich zu machen.

5.1 Aufbau der Atmosphäre

Die Atmosphäre besteht zu mehr als 99% aus den Gasen Stickstoff, Sauerstoff, Argon sowie Kohlendioxid, wobei Stickstoff mit einem Anteil von 78,1%, Sauerstoff mit 20,9%, Argon mit 0,93% sowie Kohlendioxid mit einem Anteil von 0,0035% vertreten ist. [7] S.100 Da sich diese Verhältnisse zwischen den Gasen im Laufe der Zeit nur sehr langsam verändern, können diese als nahezu konstant betrachtet werden. Neben diesen Hauptkomponenten der Atmosphäre gibt es jedoch noch eine große Anzahl an Spurengasen, deren jeweilige Konzentrationen zum Teil stark schwanken. Obwohl diese Spurengase, welche in wesentlich kleineren Mischungsverhältnissen von ppmv bis sub-pptv vorliegen, nur einen sehr geringen Teil der Atmosphäre ausmachen, beeinflussen diese doch wesentlich die Eigenschaften der Atmosphäre. Deren Auswirkungen lassen sich daher in allen Bereichen des Lebens in den Ökosystemen erkennen. Es sind die Spurengase, die einen maßgeblichen Einfluss auf das Klima der Erde haben. Diese verursachen unter anderem den für das Leben essentiellen Effekt, den so genannten Treibhauseffekt. [13] S. 1-3

Bei der Betrachtung des Aufbaus der Atmosphäre (Abb. 11) lässt sich erkennen, dass diese sich in mehrere Schichten aufteilt, welche nach ihrem Temperaturverlauf mit der Höhe in Troposphäre, Stratosphäre, Mesosphäre und Thermosphäre unterteilt werden. Da für diese Arbeit lediglich die Troposphäre und die sich daran anschließende Stratosphäre relevant sind, werden die anderen Atmosphärenschichten in den folgenden Ausführungen nicht erläutert. Die Troposphäre erstreckt sich von der Erdoberfläche bis 10 - 12 km Höhe und steht in enger Wechselwirkung mit dem Erdboden. Zwischen der Troposphäre und der Stratosphäre wird der Austausch von Luftmassen infolge der Temperaturinversion an der Tropopause sehr verlangsamt. Für beide Hemisphären existiert jedoch ein Zirkulationssystem, wodurch am Äquator die Luft aufsteigt und an den beiden Polen wieder an die bodennahen Schichten zurückgeführt wird. Dadurch gelangen Spurenstoffe nach mehrjährigem troposphärischem Aufenthalt in die Strato-

sphäre, wo auch reaktionsträgere Stoffe vor allem über photochemische Reaktionen abgebaut werden. [16] S.17, [17] S.140

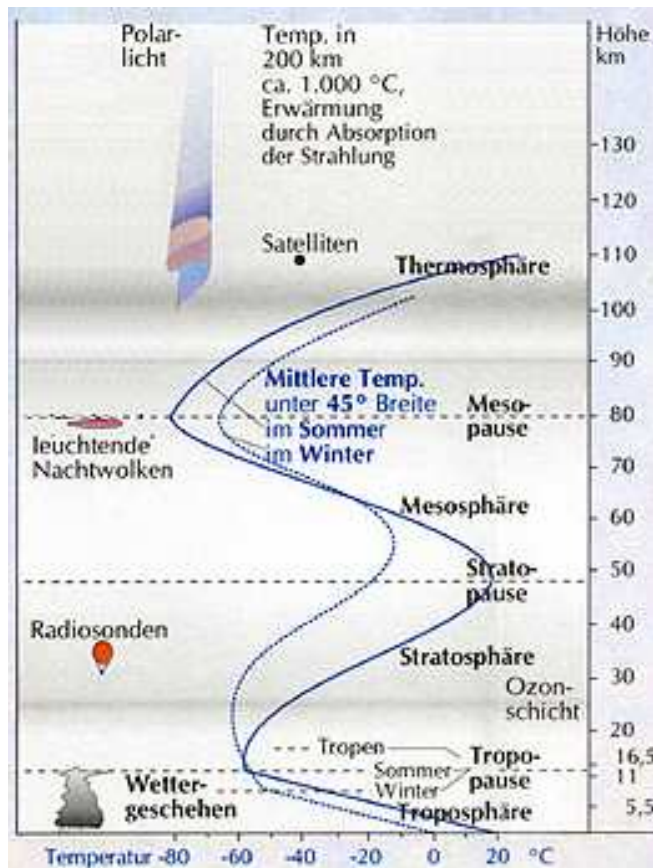


Abb. 11: Aufbau und Temperaturverlauf der Atmosphäre [35]

Wegen der Filterwirkung in den höheren Luftschichten gelangt das Sonnenlicht erst oberhalb einer Wellenlänge von 300 nm in die bodennahen Schichten. Die meisten Spurengase sind oberhalb von dieser Wellenlänge für das Sonnenlicht transparent und können daher keine photochemischen Primärreaktionen eingehen. Auch wenn Sonnenstrahlung der energetischsten Wellenlänge in die Stratosphäre gelangt, dringt auch Licht von ausreichender energetischer Wellenlänge in die Troposphäre, welches dort die signifikante photochemische Reaktion einsetzen lässt. Kurzwellige Sonnenstrahlen erwärmen unseren Planeten während dieser die Energie zu höheren Wellenlängen verschoben im thermischen Infrarotbereich wieder abgibt. Einige Gasmoleküle sowie Wolkentröpfchen und Aerosolpartikel haben die Eigenschaft diese thermische Infrarotstrahlung zu absorbieren. Da die von diesen Teilchen wieder abgegebene Energie gleichförmig in alle Raumrichtungen emittiert wird, bedeutet dies eine Teilrückstrahlung der Energie in Richtung Erde. Somit wirkt der Effekt einer gleichförmigen Abkühlung

entgegen und erzeugt eine dem normalen thermischen Gleichgewichtszustand gegenüber erhöhte Temperatur auf der Erde. Diese Eigenschaft der Absorption und Reemission von Infrarotstrahlung variiert von Molekül zu Molekül sehr stark. Methan, Lachgas und Kohlenstoffdioxid zum Beispiel sind Gase mit einem starken Treibhauseffekt. Diese beeinflussen das Klima signifikant, obwohl sie nur in vergleichbar sehr kleinen Mischungsverhältnissen vorkommen. [14] S. 92

Im Gegensatz zu Methan oder Lachgas besitzt Formaldehyd ein sehr geringes Treibhauspotential, weshalb es für den Treibhauseffekt als vernachlässigbar klein angesehen werden kann. Generell soll durch das Treibhauspotential untersucht werden, inwieweit die Formaldehydemissionen aus der Industrie zur Erwärmung der Atmosphäre beitragen. Für Spanplatten, in denen Formaldehyd als Bindemittel verwendet wird, gilt z.B. ein Treibhauspotential von $-1,32 \text{ kg CO}_2 - \ddot{\text{A}}\text{q/kg}$ bezogen auf 100 Jahre. [37] Allerdings ist Formaldehyd eine Ozonvorläufersubstanz, wodurch es ein großes Ozonbildungspotential mit $0,0019 \text{ kg C}_2\text{H}_4\text{-}\ddot{\text{A}}\text{q}$ am Erdboden besitzt. Durch die Einwirkung von Sonnenlicht wird Formaldehyd in der Atmosphäre zu Ozon umgewandelt. Dadurch wird eine verstärkte Bildung von Sommersmog verursacht, der die Atemwege reizen und die Vegetation schädigen kann. Neben einer direkten Beeinflussung des Strahlungshaushaltes verursacht Formaldehyd somit eine indirekte Klimawirkung aufgrund der photochemischen Bildung von Ozon. [30] S.9.11, [37]

Die gegenwärtige Zusammensetzung der Atmosphäre muss als ein dynamisches Gleichgewicht verstanden werden, bei dem Quellen und Senken der einzelnen atmosphärischen Bestandteile einander kompensieren. Dieses Gleichgewicht kann durch zivilisatorische Aktivitäten wie Abgase aus Kraftwerken oder Kraftfahrzeugen gestört werden. Wie kann es nun aber sein, dass bei fortlaufenden Emissionen, sowohl anthropogenen als auch natürlichen Ursprungs, die Konzentrationen der vielen Spurengase im Vergleich zu den Hauptkomponenten der Atmosphäre dauerhaft so gering bleiben? Dieser Effekt beruht auf der atmosphärischen Selbstreinigungskraft, welche auf das Wettergeschehen in Verbindung mit dem Wasserkreislauf aus Verdunstung, Wolkenbildung und Niederschlag zurückzuführen ist. Ein Hauptmerkmal unserer Atmosphäre ist ihre einzigartig hohe Oxidationskraft. [28] S.2-4 Somit können flüchtige organische Verbindungen und andere Stoffe, die in die Atmosphäre gelangen, durch schrittweise Oxidation zu CO_2 , H_2SO_4 und HNO_3 in lösliche Verbindungen überführt und über nasse und trockene Deposition aus dem System entfernt werden. Diese Oxidationsmechanismen sind demnach dafür verantwortlich, die in die Atmosphäre emittierten Verbindungen zu entfernen. Diese unterdrücken somit eine ansonsten mit wachsenden Emissionen einhergehende, immer stärker werdende klimatische Verän-

derung. Die Lebensdauer der Partikel und wasserlöslichen Gase in der Troposphäre ist daher kurz und beträgt im Mittel nur wenige Tage bis Wochen. Wie in der Stratosphäre sind auch in der Troposphäre chemische und photochemische Prozesse eng mit dynamischen Prozessen verzahnt. Aber anders als in der Stratosphäre, wo der Vertikal-austausch wegen der Temperaturzunahme mit der Höhe stark behindert ist, bewirken die höchst variablen und turbulenten Winde in der Troposphäre, in der die Temperatur mit der Höhe abnimmt, neben der horizontalen Durchmischung eine rasche und effektive vertikale Durchmischung. [13] S.3-5 Nachfolgende Abbildung soll die komplexen Vorgänge in der Atmosphäre von der Emission über die Transmission bis hin zur Immission von Formaldehyd illustrieren. [20] S.7

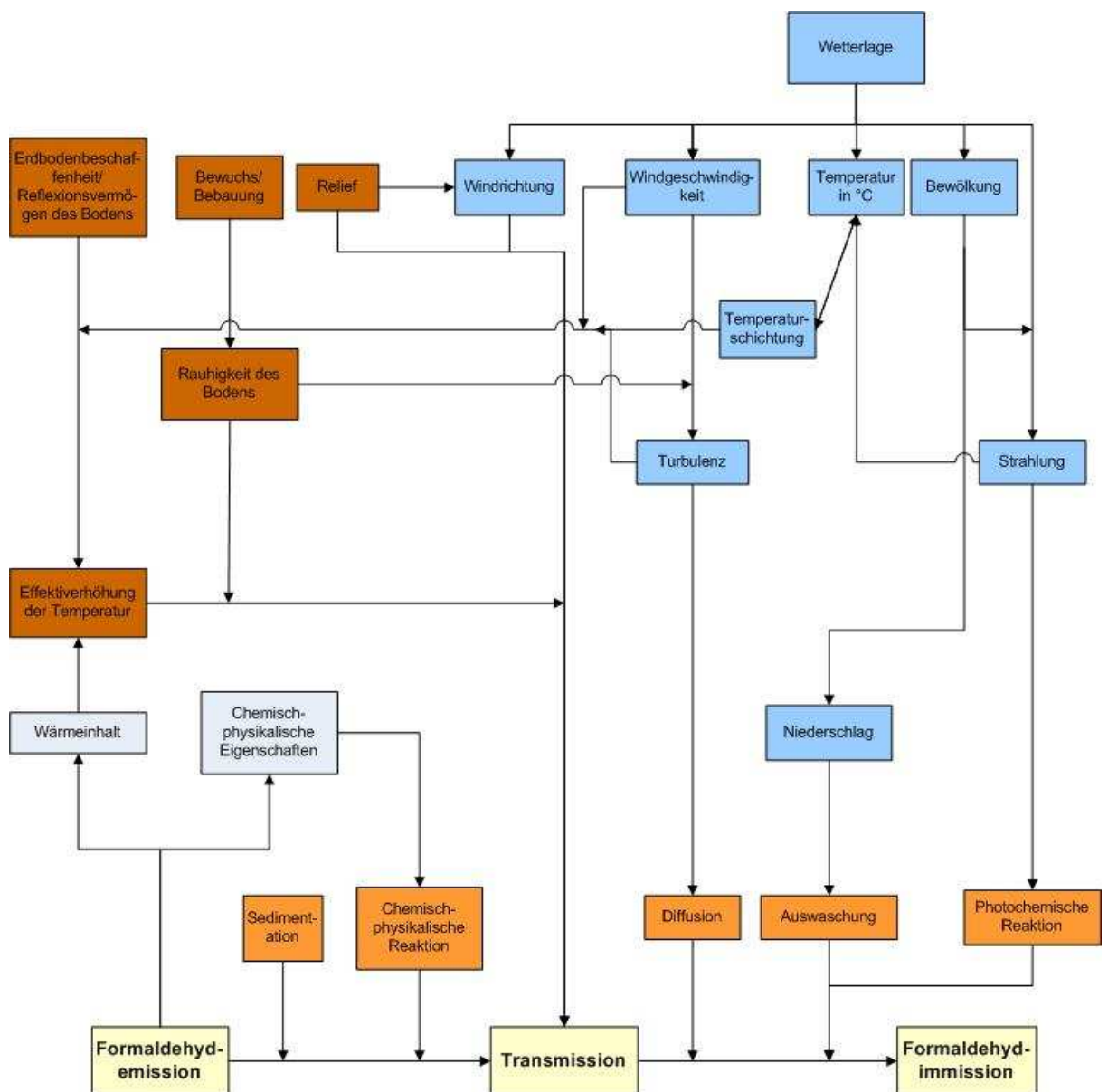


Abb. 12: Abbauvorgänge in der Atmosphäre

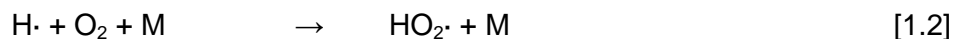
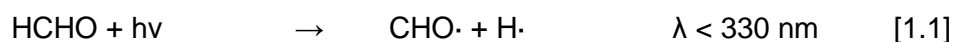
Formaldehyd kann jedoch durch verschiedene Reaktionsmechanismen in der Atmosphäre abgebaut werden. Dieser Abbau kann chemisch über Photolyse oder OH-Radikale und/oder physikalisch über trockene und nasse Deposition erfolgen. Der photolytische sowie der radikalische Abbau bezieht sich in den nachfolgenden Ausführungen auf die reine Atmosphäre, in der Formaldehyd nur als Spurenstoff in der Atmosphäre vorliegt und eine geringe Konzentration aufweist.

5.2 Photolytischer Abbau von Formaldehyd

Formaldehyd ist ein wichtiges Intermediat der Photooxidation verschiedener Kohlenwasserstoffe. Die Reaktion von OH-Radikalen mit Methan, dem einfachsten Kohlenwasserstoff, liefert Formaldehyd. Das Formaldehyd wird entweder photolytisch oder durch Reaktion mit OH zu CO abgebaut.

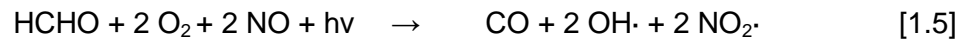
Bei der Photolyse von Formaldehyd werden unter anderem Wasserstoff- und HCO-Radikale gebildet. Formaldehyd ist daher eine wichtige Radikalquelle in der Atmosphäre und ein Vorläufer von Hydroxylradikalen, denn die bei der Photolyse gebildeten Radikale können mit Sauerstoff weiter zu Hydroperoxy-Radikalen reagieren. Aus diesen kann wiederum OH \cdot oder durch Rekombination Wasserstoffperoxid entstehen. [27] S.219

Abhängig von der Wellenlänge der Strahlung können folgende Photolysereaktionen ausgelöst werden:



[27] S.220

Dabei liegt das Maximum der Radikalproduktion bei einer Wellenlänge von ca. 300 nm. Legt man die üblichen Reaktionsfolgen für die entstandenen Radikale CHO \cdot und H \cdot zugrunde, so erhält man für die Photolyse bei Wellenlängen unter 320nm folgende Nettogleichung:



Diese Gleichung unterstreicht die Wirkung der Formaldehydphotolyse auf den atmosphärischen Radikalhaushalt. Bei jeder Zersetzung eines Moleküls HCHO werden 2 neue Radikale produziert und gleichzeitig 2 NO-Moleküle oxidiert. [7] S. 173

Um schließlich die Photolysehalbwertszeit ermitteln zu können, ist eine Berechnung mit folgender Gleichung notwendig:

$$t_{1/2} = \ln 2 / k_{\text{OH}} [\text{OH}] \quad [1.6]$$

Diese kann dann im Hinblick auf die Abbaugeschwindigkeit und die Ausbreitung eines Stoffes wie folgt interpretiert werden:

$t_{1/2} < 1$ Tag	rascher Abbau
$t_{1/2}$ 1-10 Tage	abbaubar, Verteilung möglich
$t_{1/2} > 10$ Tage	langsamer Abbau, großräumige Verteilung möglich

Da Formaldehyd in geringer Konzentration eine Halbwertszeit von nur wenigen Stunden besitzt, erfolgt der Abbau sehr rasch. [15] S.25

5.3 Radikalischer Abbau von Formaldehyd

Bestimmend für die Oxidationskraft der Atmosphäre ist das Ozon. Dieses bewirkt durch die Photolyse in der Troposphäre eine weitverzweigte Radikalchemie, die die elementaren Oxidationsprozesse der Troposphärenchemie beinhaltet. Von entscheidender Bedeutung ist dabei das Hydroxyl-Radikal, welches die Oxidationskraft der Atmosphäre als Hauptoxidant determiniert. Eine schematische Darstellung der wichtigsten troposphärenchemischen Prozesse findet sich in Abb. 13. [13] S.4

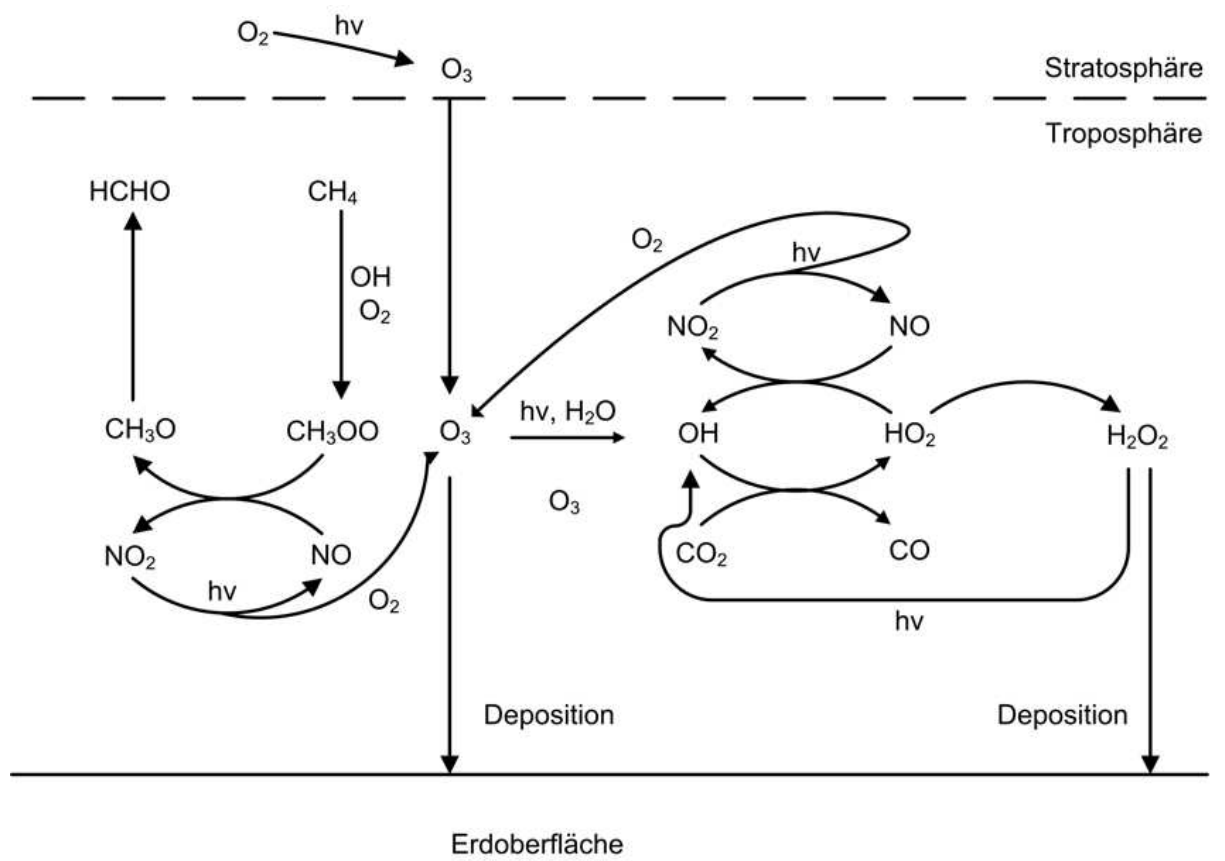
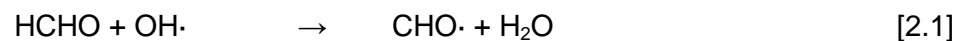


Abb. 13: Troposphärenchemische Prozesse [13] S. 4

Die oxidative Abbaureaktion von Formaldehyd mit OH-Radikalen verläuft nach folgenden Reaktionsgleichungen:



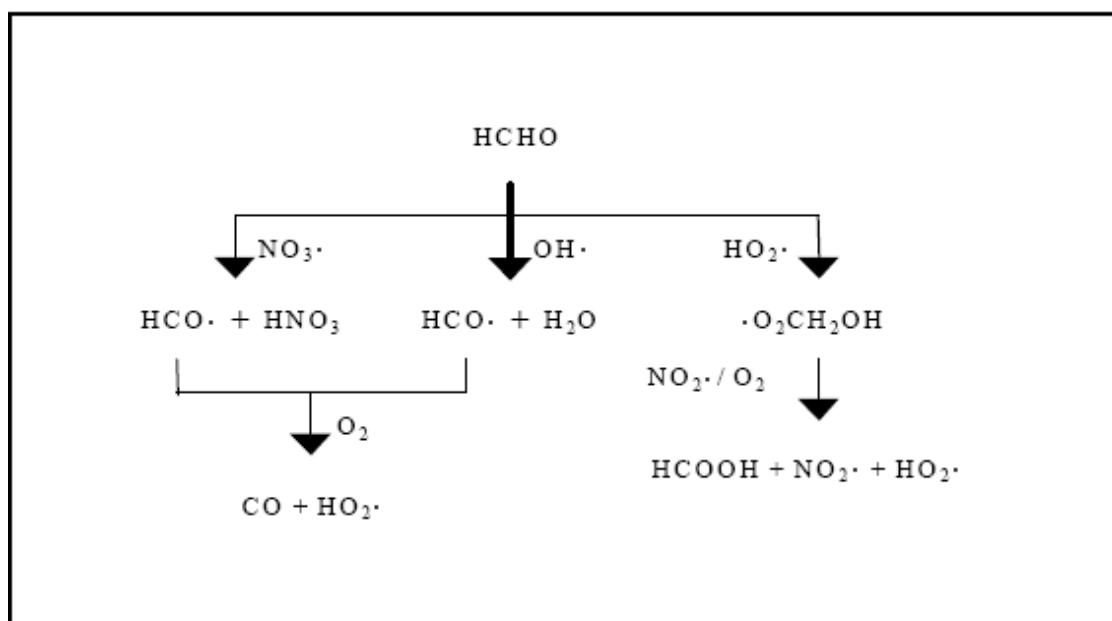
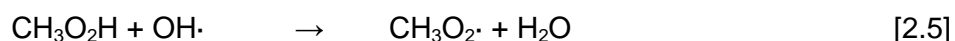
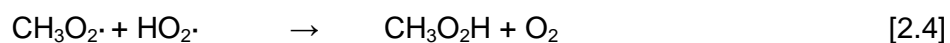


Abb. 14: Abbau von Formaldehyd durch die Reaktion mit Radikalen [11] S.16

Die bei der Methanoxidation intermediär entstandenen Methylperoxyradikale können auch einen direkten Einfluss auf das HO_x -Budget haben. Diese katalysieren, wie in den folgenden Gleichungen dargestellt, eine Kombination von OH - und HO_2 - Radikalen:



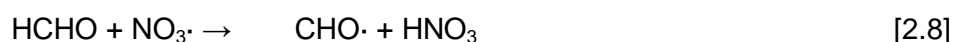
Je nach Reaktionskanal werden entweder die HO_x -Radikale umverteilt oder Hydroperoxy-Radikale gebildet. Formaldehyd kann demnach einen signifikanten Einfluss auf das HO_x -Budget und das Verhältnis von $\text{OH}\cdot$ zu $\text{HO}_2\cdot$ haben. Die Methanoxidation resultiert somit in NO-reichen Regimen in einer Produktion von Ozon und einer Destruktion von $\text{HO}_x\cdot$. Die komplexeren Reaktionszweige unter NO-armen Bedingungen führen zu einer Zerstörung von $\text{HO}_x\cdot$, welche durch die Weiteroxidation des entstandenen HCHO kompensiert werden kann. Entgegen früherer Annahmen, dass Nicht-Methan-Kohlenwasserstoffe keinerlei Einfluss auf die Chemie der unbelasteten Troposphäre haben, ist nach neueren Studien davon auszugehen, dass etwa 15% des Ozonbudgets auf NMHC zurückzuführen ist. Wie unter 5.1 bereits beschrieben besitzt Formaldehyd ein hohes Ozonbildungspotential. [27] S.304

Die HO₂-Radikale führen durch die Umformung von NO zu NO₂ zur Erzeugung weiterer Ozonmoleküle. In der Nacht kann der Abbau durch NO₃, welches durch die Reaktion von Ozon mit NO₂ entsteht, eine Senke bilden. Die Reaktion von Formaldehyd mit NO₃ führt zur Bildung von wasserlöslicher Salpetersäure, die durch nasse Deposition der Atmosphäre entzogen wird.

Entstehung von NO₃·:



Abbau von Formaldehyd durch die Reaktion mit NO₃·:



Am Tag photolysiert NO₃, bevor es mit einem anderen Molekül reagieren kann. In der Nacht kann es hingegen Konzentrationen im pptv-Bereich erreichen. Inwieweit NO₃ für den Abbau eines bestimmten Moleküls wichtig ist, hängt sehr von den meteorologischen und chemischen Bedingungen ab. Die Reaktion von Formaldehyd mit NO₃ ist jedoch vergleichsweise langsam ($k = 5,8 \times 10^{-16} \text{ cm}^3/(\text{molec} \cdot \text{s})$). In Gegenwart von NO₂ beträgt die Halbwertszeit $t_{1/2}$ ca. 35 Minuten. Die mittlere Halbwertszeit in der Atmosphäre wird mit 1-2h angegeben.

Die Ozonolyse ist im Vergleich zur Photolyse und zu den Reaktionen mit OH· oder NO₃· bei dem Formaldehyd zu langsam, als dass sie in der Atmosphäre Bedeutung hätte. Die Lebensdauern betragen gegenüber der Reaktion mit O₃ einige Jahre. Neben der chemischen Reaktion kann das Formaldehyd auch durch trockene und/oder nasse Deposition aus der Atmosphäre entfernt werden. Die Deposition kann in der Nacht zu einer wichtigen Senke für Formaldehyd werden, wenn die Reaktion mit dem NO₃-Radikal unbedeutend ist. Das kann der Fall sein, wenn die Reaktion von NO₃ mit anderen Verbindungen schneller ist, so dass zu wenig NO₃ für eine effiziente Entfernung des Formaldehyds zur Verfügung steht. Auf die Mechanismen der trockenen und nassen Deposition wird nachfolgend eingegangen. [27] S.221

5.4 Deposition

Deposition ist der Stoffeintrag von der Atmosphäre auf die Erdoberfläche. Dabei wird zwischen der trockenen und der nassen Deposition unterschieden. Im Gegensatz zum radikalischen und photolytischen Abbau können bei der Deposition größere Mengen an Formaldehyd umgewandelt und transportiert werden. [50]

5.4.1 Nasse Deposition

Die nasse Deposition ist ein Prozess, bei dem Chemikalien aus der Atmosphäre entfernt werden und durch Regen, Schnee, Wolkenwasser, Nebel oder Graupel zur Erdoberfläche gelangen. Dieser physikalische Abbauvorgang dient als sensibler Indikator für veränderte Emissionsverhältnisse. Der Regen ist ein wichtiger Reinigungsprozess der Atmosphäre. Dieser sorgt dafür, dass Formaldehyd nach dessen Oxidation und chemischer Umwandlung als wasserlösliches Endprodukt ausgewaschen wird. [14] S.92

Formaldehyd liegt sowohl in der Luft als auch im Regenwasser vor. Dabei hat die Auswaschung durch wässrige Phasen die größte Bedeutung infolge der hohen Henry-Konstante, die die Gleichgewichtsverteilung einer Substanz zwischen Gas- und Flüssigphase angibt. Die Wasserlöslichkeit von Formaldehyd beträgt 3200 M atm^{-1} bei 298K am Erdboden und besitzt eine Temperaturabhängigkeit $-\Delta H/R$ von 6800K . [44]

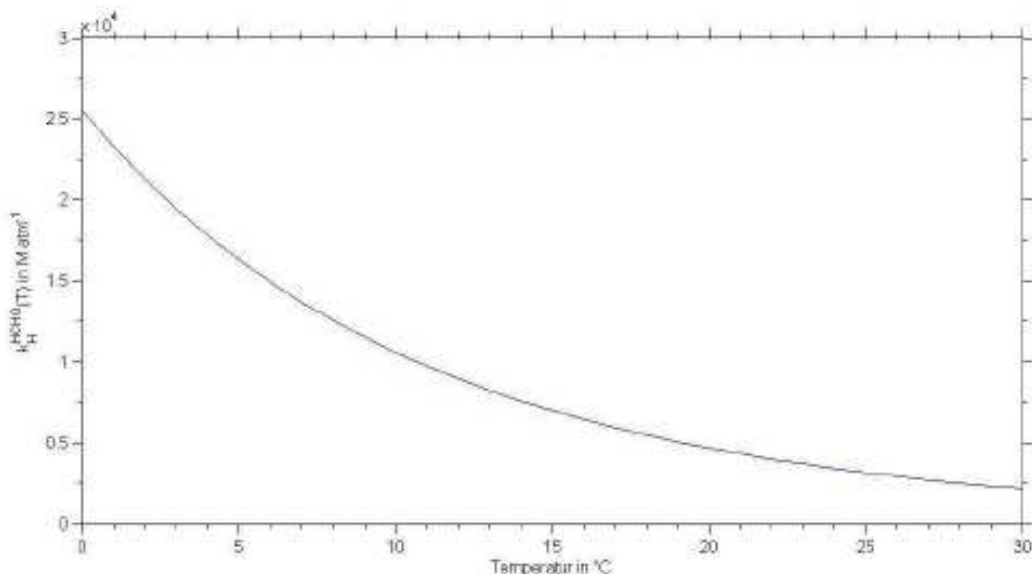
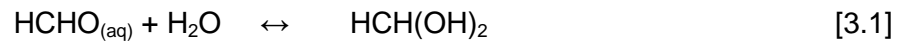


Abb. 15: Temperaturabhängigkeit der Henrykonstante [44]

Je höher also die Henrykonstante, desto größer der Anteil in der Wolkenphase und desto geringer der Gasphasenanteil. Die gute Wasserlöslichkeit von Formaldehyd kann unter anderem auch durch die Bildung des Hydrates Methandiol $\text{HCH}(\text{OH})_2$, einem geminalen Diol, erklärt werden, welches das Lösungsgleichgewicht in Richtung der flüssigen Phase verschiebt. Das hydratisierte Formaldehyd, welches durch OH-Radikale angegriffen wird, ist eine der bedeutendsten organischen Flüssigphasenreaktionen. Formaldehyd steht in wässriger Lösung mit seinem entsprechenden gem-Diol, dass heißt einem Kohlenwasserstoff mit zwei Hydroxy-Gruppen an einem Kohlenstoffatom, im Gleichgewicht. In der Regel liegt das Gleichgewicht auf der Seite des Aldehyds.



Daraus ergibt sich eine Hydratisierungskonstante mit einem Wert von 2530 bei 298K für Formaldehyd aus der Gleichung:

$$K_{\text{HCHO}} = [\text{HCH}(\text{OH})_2] / [\text{HCHO}_{(\text{aq})}] \quad [3.2]$$

Dieser eher große Wert der Hydratisierungskonstante lässt denken, dass die Hydratisierung im Wesentlichen vollständig ist und dass das gesamte, gelöste Formaldehyd in gem-Diol-Form vorliegt. Für das thermodynamische Gleichgewicht ergibt sich somit: [27] S.304

$$[\text{HCH}(\text{OH})_2] = \text{H} + \text{HCHO} \quad [3.3]$$

Somit könnte angenommen werden, dass Formaldehyd überwiegend in der Wolkenphase vorliegt. Allerdings ist die Henry-Konstante von Formaldehyd temperaturabhängig gemäß der Gleichung:

$$k_H^{HCHO}(T) = k_H^{HCHO,\ominus} \cdot \exp\left(-\frac{\Delta H}{R}\left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T^\ominus}\right)\right) = 3200 \frac{M}{atm} \cdot \exp\left(6800 \cdot \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T^\ominus}\right)\right) \quad [3.4]$$

T: interessierende Temperatur

T[°]: Standardtemperatur (298K)

k_H^{X,°}: Standard Henrykonstante bei Standardbedingungen

Δ_{sol}H: substanzabhängige Lösungsenthalpie [44]

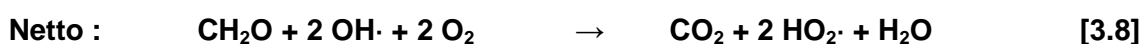
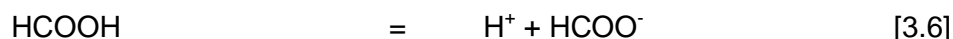
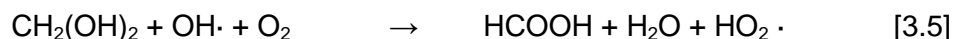
Die Gleichung beschreibt das Löslichkeitsverhalten von Formaldehyd in Abhängigkeit von der Temperatur. Die Löslichkeit nimmt mit zunehmender Temperatur ab, da die kinetische Energie der Moleküle steigt und demnach die Bindungen der Wassermoleküle schneller brechen. Damit verschiebt sich das Gas-Wasser-Gleichgewicht zur Gasphase hin und weniger Formaldehyd wird gelöst. In den kälteren Atmosphärenschichten liegt somit eine höhere Löslichkeit von Formaldehyd in der Flüssigphase vor und das Formaldehyd wird ausgewaschen. In den wärmeren Schichten liegt dann dagegen mehr Formaldehyd in der Gasphase vor.

Nach Crutzen und Lawrence ist das Verhältnis von Gasphasenkonzentration zu Wolkenwasserkonzentration 50% zu 50% bei einer Henrykonstante von 10⁻⁵ M/atm. Damit würde Formaldehyd bei ca. -14 °C im Wolkenwasser aufgenommen werden. Dies gilt allerdings nur in den oberen Atmosphärenschichten, in denen -14 °C vorherrschen. Bei Temperaturen von ca. 25 °C ist das Löslichkeitsverhalten allerdings immens herabgesetzt aufgrund der Temperaturabhängigkeit der Henry-Konstante. [44]

Bei einer Gleichgewichtseinstellung zwischen Flüssigphase und Gasphase liegt der Großteil des atmosphärischen Formaldehyds in der Gasphase vor, da HCHO bei einem typischen Wassergehalt der Luft von etwa 0,1 g/m³ ungefähr eine Henry-Konstante von 10⁵ mol/l haben müsste, um in gleichen Teilen in Gas- und Flüssigphase vorzuliegen.

Das Meiste des verfügbaren Formaldehyds verbleibt typischerweise in der Gasphase in einer Wolke davon ausgehend, dass [OH_(aq)] = 10⁻¹² M und dass die Flüssigphase des Formaldehyds im Henrygleichgewicht mit ξ = 1ppb ist, [HCH(OH)₂] = 6,3 μM, und dass sich die Reaktion mit einer Rate von 36M h⁻¹ fortsetzt.

Durch die Oxidation des Formaldehyds mit dem OH-Radikal bei Vorliegen in der flüssigen Phase als gem-Diol wird intermediär Ameisensäure gebildet, die letztendlich zu Kohlendioxid weiteroxidiert wird:



Die Ameisensäure wird deshalb von demselben Radikal in Kohlenstoffdioxid umgewandelt, welches die Produktion ausgelöst hat. Für das Verhältnis von Produktion und Auflösung der Ameisensäure gilt:

$$r_f = k_{7,A.32} [\text{H}_2\text{C}(\text{OH})_2] / k_{7,A.33} [\text{HCOO}^-] + k_{7,A.34} [\text{HCOOH}_{(\text{aq})}] \quad [3.9]$$

Durch die Umwandlung zu Ameisensäure kommt es zu dem Effekt des sauren Regens. Der saure Regen oder saure Niederschlag ist das Ergebnis vieler chemischer Reaktionen, die sich in der Luft abspielen. Niederschlag hat meist einen pH-Wert von 5-5,6 aufgrund natürlicher, atmosphärischer Reaktionen mit CO_2 . Fällt der pH-Wert unterhalb 5,6 so wird er als saurer Regen bezeichnet. HCHO wurde in Konzentrationen von 50 bis 150 ng/ml im Regen nachgewiesen. Zunächst werden vor allem bei unvollständigen Verbrennungsprozessen Gase wie Formaldehyd in die Atmosphäre entlassen. Sie reagieren mit Hydroxy-Radikalen und Sauerstoffatomen, wodurch Säuren entstehen, vor allem Ameisensäure oder auch Salpetersäure. Dies ist dahingehend von Bedeutung, da die Ameisensäure bzw. Salpetersäure zur Acidität des Niederschlages erheblich beiträgt. Der saure Regen erreicht schließlich Gewässer sowie die Vegetation. Da die Säuretröpfchen sehr hygroskopisch sind, werden diese vom Wasser leicht aufgenommen und können daher Wasserorganismen schädigen. Des Weiteren führt der saure Regen zur Versauerung der Böden und Gewässer. [27] S.338

Zudem würde er in erheblichem Maße Einfluss auf die Vegetation nehmen. Als typische Vergiftungssymptome bei Pflanzen wären Vergilbungen der Blätter, Spitzen- und Randnekrosen sowie Chlorosen zu erwarten.



Abb. 16: Blattnekrosen [49]

In einigen Studien wurde auch die verringerte Keimung verschiedener Pflanzenarten mit dem Ansteigen der Formaldehydkonzentration beobachtet. Die langfristige Beeinflussung der Keimfähigkeit mit ansteigender Formaldehydkonzentration ist allerdings noch nicht vollständig geklärt. Zusammen mit anderen Niederschlagsarten kann Formaldehyd auch zur Bildung von saurem Nebel oder saurem Schnee führen.

Generell nimmt die nasse Deposition mit der Entfernung von der Emissionsquelle und mit zunehmender Höhe in den Mittelgebirgsregionen zu. Die nasse Deposition ist abhängig von der Höhe und Intensität des Niederschlages sowie dem Gesamtkonzentrationsfeld, insbesondere im Wolkenbereich. Eine quantitative Abschätzung der nassen Deposition von Formaldehyd ist jedoch nicht möglich. [17] S. 142

5.4.2 Trockene Deposition

„Die trockene Deposition ist der Übergang gasförmiger und mikropartikulärer Teilchen aus der Atmosphäre auf die Erdoberfläche.“ [14] S. 93 Die wichtigsten Einflussfaktoren auf die Sedimentation sind dabei die Partikeleigenschaften (Größe, Form, Dichte, Hygroskopizität) bzw. Gaseigenschaften (Löslichkeit, Reaktivität) und Konzentration des Schadstoffes. Des Weiteren sind die Parameter der Rezeptor-Oberfläche (Rauigkeitslänge, Landnutzungstyp und dessen Zustand, also Feuchtigkeit) von Bedeutung sowie die meteorologischen Konditionen wie Turbulenz (Windgeschwindigkeit, Schubspannungsgeschwindigkeit), atmosphärische Stabilität und relative Feuchte. Der Prozess der trockenen Deposition kann als dreistufig betrachtet werden. Es erfolgt ein aerodynamischer Transport durch die atmosphärische Bodenschicht zu einer sehr dünnen stationären an den Erdboden angrenzenden Luftschicht. Danach werden die Moleküle von der stationären Luftschicht, der so genannten quasi-laminaren Schicht, zum Erdboden transportiert. Anschließend erfolgt die Aufnahme am Erdboden. Zur Veranschaulichung dieses Vorgangs dient die nachfolgende Abbildung. [46]

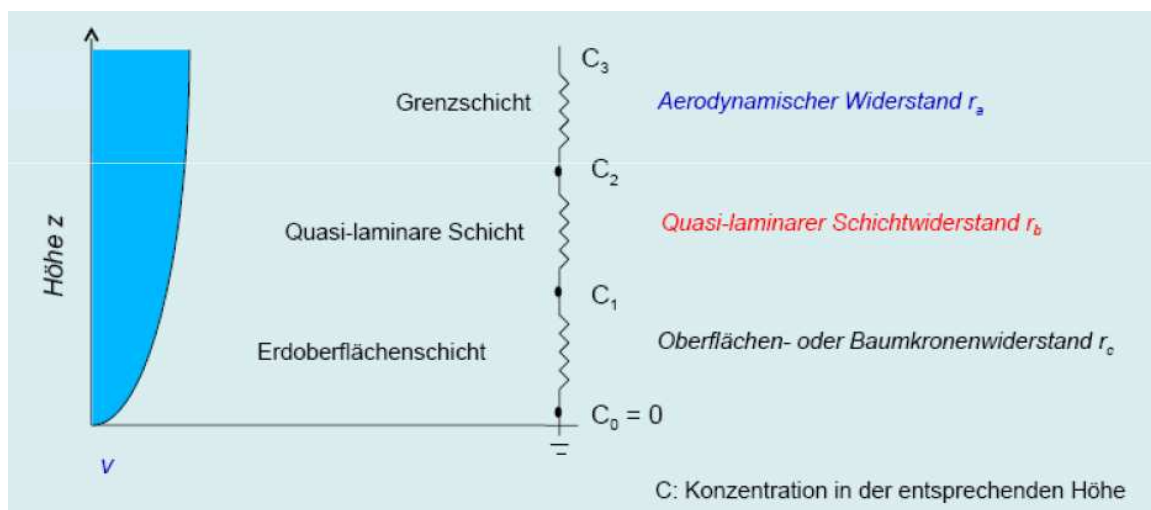


Abb. 17: Grenzschichtprofil Atmosphäre [46]

Die trockene Deposition von Formaldehyd kann nicht genau ermittelt werden, da zwar eine trockene Deposition stattfindet, diese allerdings quantitativ nicht bestimmt werden kann, da die Messstellen in Sachsen kein Formaldehyd in ihrer Messung integrieren. Die trockene Deposition von Formaldehyd erfolgt nur, wenn dieses in der Gasphase vorliegt, was lediglich in einigen Atmosphärenschichten der Fall ist. Dieser physikalische Abbauvorgang ist außerdem verstärkt direkt am Austritt der Emissionsquelle vorzufinden.

5.5 Geografische und meteorologische Einflüsse auf die Ausbreitung von Formaldehyd

„Sachsen erstreckt sich in einer Höhenlage von 73 m über NN an der Elbe und bis 1215 m über NN auf dem Fichtelberg.“ [42]

Um den Abbau und das Verhalten von Formaldehyd in der Atmosphäre in vollem Umfang beurteilen zu können, ist es erforderlich, Kenntnisse über die unterschiedlichen Witterungseinflüsse in Sachsen zu besitzen. Deshalb erfolgt eine Betrachtung von Lufttemperatur, Luftfeuchtigkeit, Niederschlag, Luftdruck, Strahlung sowie den Windverhältnissen, welche über das Jahr verteilt in verschiedener Weise zusammenwirken.

In der nachfolgenden Tab. 6 werden die Witterungsverhältnisse in Sachsen an 2 ausgewählten Wetterstationen überblicksmäßig zusammengefasst.

Tab. 6: Witterungsverhältnisse 2007 [42]

Merkmal	Einheit	Wetterstation	
		Dresden-Klotzsche	Fichtelberg
Seehöhe	m ü. NN	227	1213
Lufttemperatur (Mittel)	°C	10,4	4,6
Niederschlag (Jahressumme)	mm	774,5	1486,3
Jahressumme der Sonnenscheindauer	Stunden	1791	1569
Tage mit Sturm	Anzahl	3	107
Sommertage (Höchsttemperatur mindestens 30,0°C)	Anzahl	47	2
Frosttage (Tiefsttemperatur unter 0,0°C)	Anzahl	50	161
Eistage (Höchsttemperatur unter 0,0°C)	Anzahl	13	70

Das Elbtal bewirkt eine Zerteilung Sachsens. Der größte südliche Teil Sachsens wird hauptsächlich durch das Erzgebirge, welches die Streichrichtung von Südwest nach Nordost aufweist, beeinflusst. Das Erzgebirge erhebt sich in Sachsen allmählich, während es nach Tschechien hin steil abfällt. Durch eine anschließende Betrachtung der Jahresmitteltemperaturen in Sachsen wird in Abb. 18 ersichtlich, dass die Temperaturen durchschnittlich in der Erzgebirgslage sowie im Vogtland niedriger sind als im restlichen Teil Sachsens. Dadurch wäre die nasse Deposition von Formaldehyd bezogen auf die Temperaturen in der Erzgebirgslage stärker, da mit abnehmender Temperatur das Gleichgewicht in Richtung der Flüssigphase verschoben wird. Dadurch wäre Formaldehyd besser wasserlöslich. Da der Witterungseinfluss Temperatur allerdings nicht allein Betrachtung finden kann, sondern mit den anderen Einflüssen komplex zusammen agiert, kann ein Rückschluss auf das Abbauverhalten von Formaldehyd ohne Betrachtung der anderen Wetterparameter nicht so einfach gezogen werden.

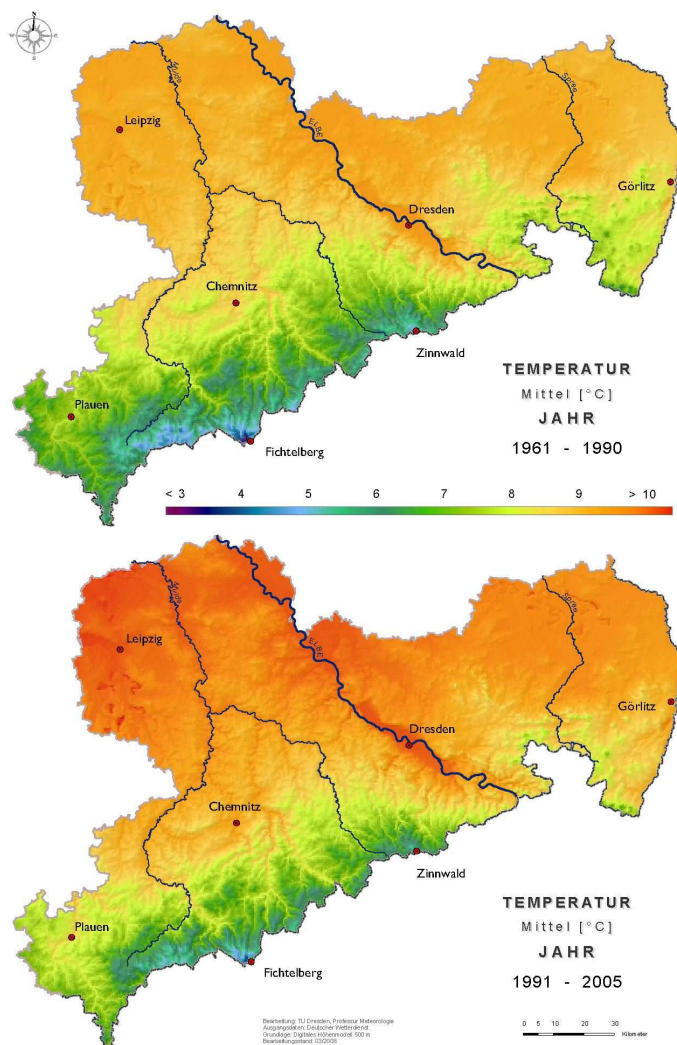


Abb. 18: Temperaturen im Jahresmittel in Sachsen [40]

Die saisonale Variation der Temperaturen soll in diesem Zusammenhang ebenfalls Betrachtung finden. Die Temperaturen in den Sommermonaten liegen dagegen bei 10-16°C. Dadurch wird die Löslichkeit von Formaldehyd enorm herabgesetzt und der Aus-
trag über trockene Deposition erhöht.

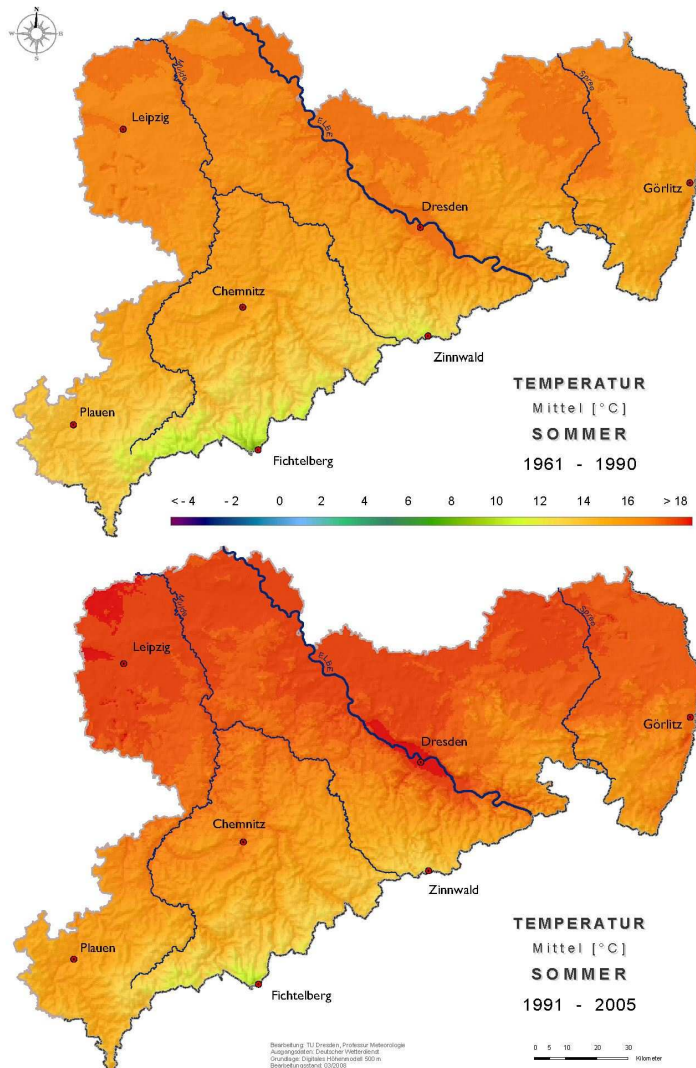


Abb. 19: Sommertemperaturen von 1991 – 2005 in Sachsen [40]

In der nachfolgenden Abb. 20 wird ersichtlich, dass die Wintermonate durchschnittlich bei 0 bis -2°C liegen, wobei auch wiederum die Gebiete im und um das Erzgebirge am kältesten sind. Demzufolge wird die Wasserlöslichkeit des Formaldehyds erhöht und das Gleichgewicht in Richtung der Flüssigphase verschoben. Der Abbau erfolgt somit vorwiegend über die nasse Deposition in Form von Schnee oder Regen.

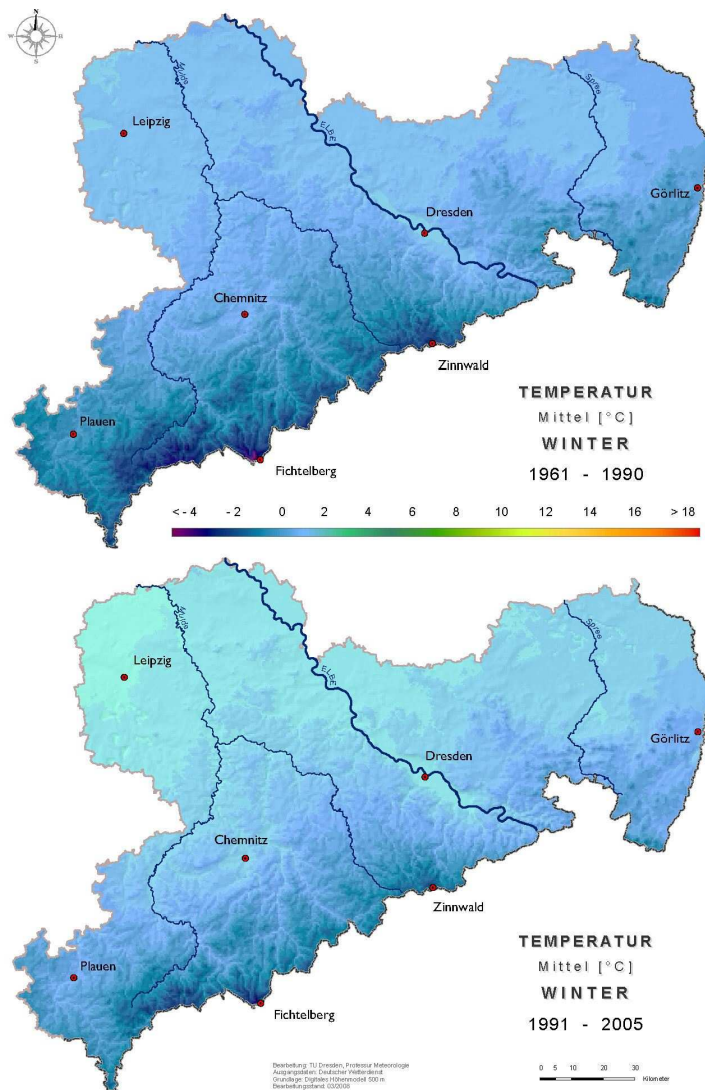


Abb. 20: Wintertemperaturen von 1991 – 2005 in Sachsen [40]

Um keine falschen Rückschlüsse auf das Abbauverhalten von Formaldehyd zu ziehen, ist es von enormer Bedeutung, die Niederschläge in Sachsen zu betrachten. Generell sind mehr Niederschläge im Sommer als in den Herbst-/Wintermonaten zu verzeichnen. In den Sommermonaten befinden sich im Allgemeinen die Niederschlagsmaxima. Infolge der erhöhten Niederschläge kann mehr Formaldehyd aus der Atmosphäre ausgewaschen werden, da dieses sich mehr im Wolkenwasser lösen könnte. Allerdings ist die Wasserlöslichkeit von Formaldehyd aufgrund der erhöhten Temperaturen im Sommer herabgesetzt.

In der nachfolgenden Abb. 21 sind die Niederschlagsmengen im Jahresmittel dargestellt. Der nördliche Bereich Sachsens wies in den Jahren zwischen 1991 - 2005 eine Niederschlagsmenge von 0-200mm auf, wohingegen der mittlere Teil zwischen 200 – 400 mm und die Erzgebirgslage 400 – 700 mm abgegeben hat. Dadurch wird deutlich,

dass generell mehr Niederschläge in der Erzgebirgslage fallen als im nördlichen Teil Sachsens.

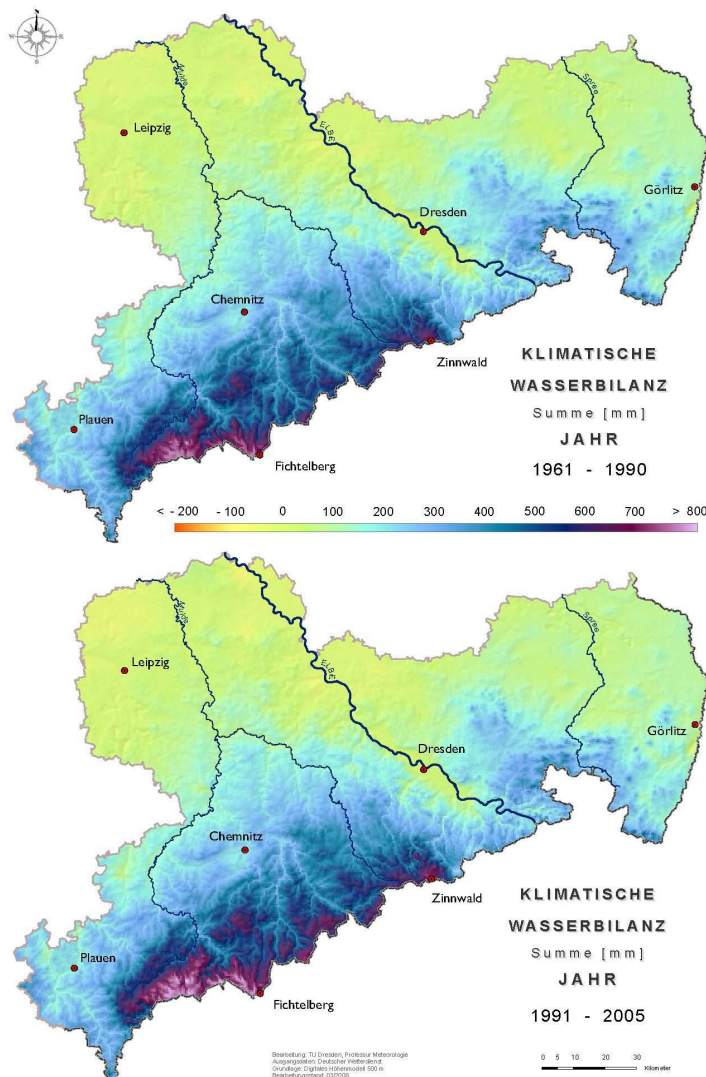


Abb. 21: Klimatische Wasserbilanz von 1991-2005 in Sachsen [40]

Für den photolytischen Abbau von Formaldehyd kann abgeschätzt werden, dass dieser verstärkt im Norden von Sachsen auftritt, da laut Tab. 6 in Dresden Klotzsche eine höhere Sonnenscheindauer als auf dem Fichtelberg vorliegt. Somit könnte mehr Formaldehyd über die Photolyse abgebaut werden.

Zusammenfassend sind in der Erzgebirgslage die Lufttemperaturen im Jahresmittel um ca. 5°C geringer als im nördlichen Teil Sachsens. Zudem weist dieses Gebiet zusätzlich eine erhöhte Niederschlagsmenge auf. Dies wird nochmalig an Tab. 6 ersichtlich. Allerdings ist die Sonnenscheindauer im Norden von Sachsen etwas höher als im Erzgebirge, wodurch der radikalische und photolytische Abbau verstärkt erfolgen kann.

Schlussfolgernd kann somit festgestellt werden, dass das Verhältnis zwischen nasser und trockener Deposition über das ganze Jahr gemittelt als nahezu konstant angesehen werden kann aufgrund des Zusammenwirkens der unterschiedlichen Witterungsverhältnisse.

Aktuelle Simulationen zeigen dagegen in Sachsen einen markanten Rückgang der monatlichen Niederschlagssummen im Sommer. Insbesondere in Nord- und Ostsachsen sind Niederschlagsrückgänge um mehr als 30 % zu erwarten. Die Winterniederschläge werden sich bis 2100 hingegen nur unwesentlich verändern. Somit kann der Winter das Niederschlagsdefizit des Sommers bei weitem nicht ausgleichen. Dadurch würde Formaldehyd eine längere Halbwertszeit in der Atmosphäre aufweisen, da ein Auswaschen und Ausregnen aus der Atmosphäre vermindert werden würde. Insbesondere im Sommer wären verstärkte Formaldehydkonzentrationen zu erwarten. In diesem Zusammenhang käme es insbesondere in den Städten zu erhöhtem Auftreten von Sommersmog.

6 Ausbreitungsrechnung für Formaldehyd

Bei der Untersuchung des Verhaltens von Formaldehyd in der Atmosphäre und der damit in Zusammenhang stehenden Ausbreitung wird LASAT 3.0 als Rechenprogramm zur Visualisierung herangezogen.

6.1 Überblick über LASAT 3.0

Die Ausbreitungsrechnung entsprechend Anhang 3 der TA Luft ist als Zeitreihenrechnung über jeweils ein Jahr oder auf der Basis einer mehrjährigen Häufigkeitsverteilung von Ausbreitungssituationen nach dem im Anhang 3 der TA Luft beschriebenen Verfahren unter Verwendung des Partikelmodells der Richtlinie VDI 3945 Blatt 3 (Ausgabe September 2000) und unter Berücksichtigung weiterer Richtlinien durchzuführen. Das im Rahmen der vorliegenden Arbeit genutzte Programm LASAT 3.0 erfüllt diese Bedingungen vollständig.

LASAT (Lagrange - Simulation von Aerosol-Transport) ist ein Modell zur Berechnung der Ausbreitung von Spurenstoffen in der Atmosphäre, welches in einem Softwareprogramm realisiert ist. „LASAT ist ein Episodenmodell, d.h. es berechnet den zeitlichen Verlauf der Stoffkonzentration in einem vorgegebenen Rechengebiet, wobei alle für die Ausbreitung wichtigen Größen als Zeitreihe vorgegeben werden. Bei der Ausbreitungsrechnung wird für eine Gruppe repräsentativer Stoffteilchen der Transport und die turbulente Diffusion durch einen Zufallsprozess auf dem Computer simuliert (Lagrange Simulation).“ [12] S.1 Es werden folgende Vorgänge zeitabhängig simuliert:

- Transport durch den mittleren Wind,
- Dispersion in der Atmosphäre,
- Sedimentation schwerer Aerosole,
- Deposition am Erdboden,
- Auswaschen der Spurenstoffe durch nasse Deposition,
- Chemische Umwandlung erster Ordnung,
- Gamma- Submersion (Wolkenstrahlung) bei radioaktiven Stoffen,
- Parametrische Erfassung der Abgasfahnenüberhöhung.

Das Gelände kann eben oder gegliedert sein und Gebäude enthalten, deren Umströmung berücksichtigt wird. Im ebenen Gelände werden die zeitabhängigen, meteorologischen Größen durch ein ebenes Grenzschichtmodell beschrieben. Dieses greift auf

einfache Parameter zur Charakterisierung der Wettersituation zurück, wie z. B. eine Klassifizierung nach TA Luft, oder es wird direkt über die Monin-Obukhov-Länge und die Mischungsschichthöhe parametrisiert. Darüber hinaus können aber auch Vertikalprofile, wie sie von SODAR- Geräten zur Verfügung gestellt werden, oder Messreihen eines Ultraschall- Anemometers verarbeitet werden. Für komplexes Gelände ist im meteorologischen Präprozessor ein diagnostisches Windfeldmodell integriert, das für indifferente und stabile Schichtung einsetzbar ist. Das diagnostische Windfeldmodell kann auch die Umströmung von Gebäuden berechnen und dabei die im Lee auftretende Rezirkulation und die erhöhte Turbulenz modellieren. Gebäude dürfen auch im gegliederten Gelände stehen. Dreidimensionale Wind- und Turbulenzfelder können auch explizit vorgegeben werden.

Das vorliegende Modell hat seinen Ursprung in den Forschungsmodellen LASAT-A und LASAT-C, die ursprünglich bei der Dornier GmbH entwickelt und dort in einer Reihe von Forschungsvorhaben eingesetzt worden sind. Der Modellalgorithmus wurde inzwischen jedoch verallgemeinert und das Programm neu konzipiert, wobei dieses aus mehreren Komponenten besteht. Anschließend wurde Lasat 3.0 in der Programmiersprache ANSI-C sowie Java neu geschrieben. Für einige der Leistungsmerkmale, wie z.B. Anzahl zulässiger Emissionsquellen, sind Maximalwerte angegeben. Diese können häufig auch überschritten werden. Ob das möglich ist, hängt von der verwendeten Rechnerkonfiguration und der Kombination von Leistungsmerkmalen ab und muss im Einzelfall geprüft werden.

Mit LASAT 3.0 können Ausbreitungsrechnungen konform zu AUSTAL2000 und damit zum Anhang 3 der TA Luft durchgeführt werden. Beide Programme sind gemäß VDI 3945/3 entwickelt und verifiziert und verwenden identische Grenzschicht- sowie Windfeldmodelle. Dies ist im Referenzbuch von LASAT beschrieben. Im Abschnitt 7 des Referenzbuches wird aufgeführt, wie die Parameter für eine AUSTAL2000-konforme Rechnung zu setzen sind. [12] S.1, [26]

6.2 Darstellung und Bewertung der Ausbreitungsrechnungen

Die Ausbreitungsberechnung mittels Lasat 3.0 dient der Darstellung der Immissionen in der unteren Troposphäre. Dabei sollen mögliche Gefahren und Gesundheitsbeeinträchtigungen auf die umliegende Umwelt bzw. Menschen abgeschätzt werden. Zur Abschätzung der Immissionssituation von Formaldehyd im Freistaat Sachsen müssen viele Parameter betrachtet werden. Deshalb gibt die Abb. 22 einen Überblick über die zu erfüllenden Gesichtspunkte.

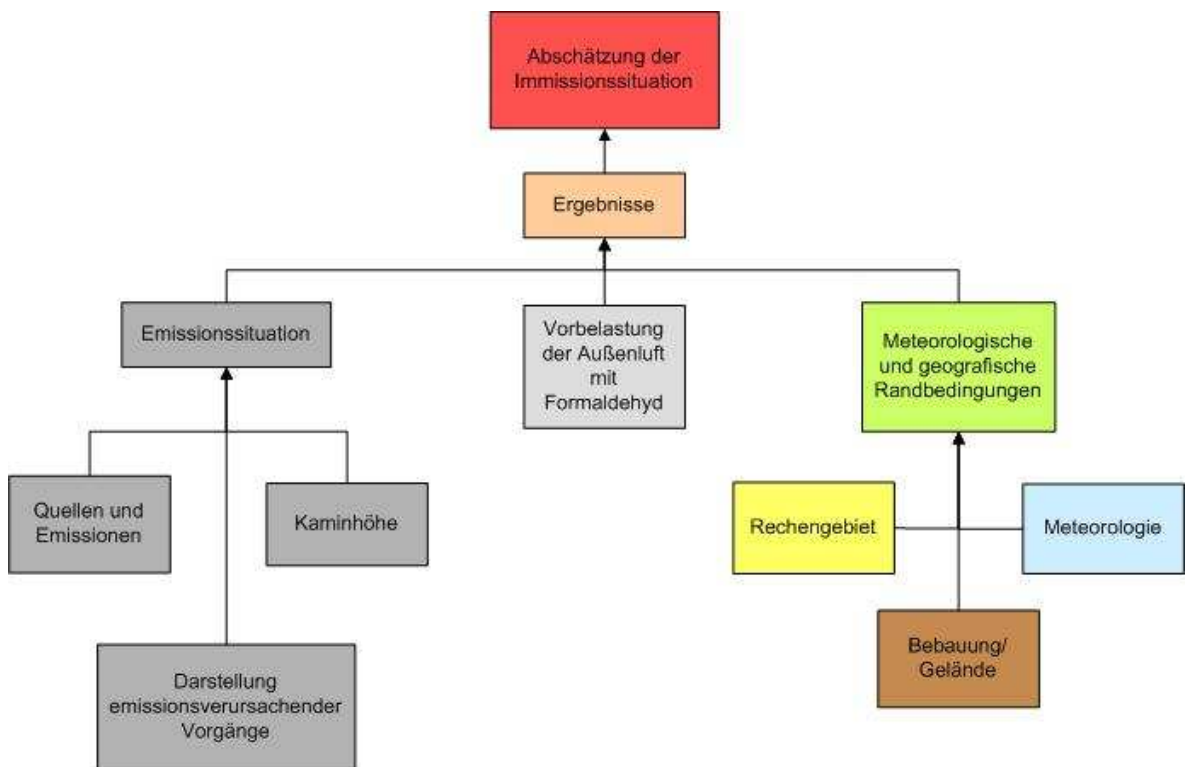


Abb. 22: Kriterien zur Abschätzung der Immissionssituation

Für Ausbreitungsrechnungen werden Daten über die Emission (Abgasvolumenstrom, Emissionsmassenstrom, Querschnittsfläche des Abgasaustritts, Abgastemperatur) und über die wesentlichen Wetterparameter im betrachteten Gebiet benötigt. Für die vorgegebene Emission soll möglichst die gesamte Vielfalt der meteorologischen Ausbreitungsbedingungen in den Rechnungen berücksichtigt werden. In der Praxis werden jedoch die Austauschigenschaften der Atmosphäre in mehreren Ausbreitungsklassen zusammengefasst, deren statistische Häufigkeit im betrachteten Gebiet in die Ausbreitungsrechnung eingeht. Damit kann für beliebige Orte im Einwirkungsbereich von Emissionsquellen die Häufigkeitsverteilung der zu erwartenden Immissionskonzentrationen

nen und damit auch Mittelwerte, Perzentile und Maximalwerte berechnet werden. Mittels Ausbreitungsklassen wird der Turbulenzzustand der Atmosphäre von stabil bis labil charakterisiert. Sie werden aus synoptischen Beobachtungen der Windgeschwindigkeit, des Gesamtbedeckungsgrades und der Wolkenart im betrachteten Gebiet, differenziert nach Monaten und Tageszeit, ermittelt. Für die Klassen wurden meteorologische Ausbreitungsparameter abgeleitet, die in die mathematische Ausbreitungsformel einzusetzen sind. [53]

Die wichtigsten meteorologischen Größen für Verhalten und Transport von Formaldehyd in der Luft sind Windrichtung, Windgeschwindigkeit und die vertikale Turbulenz. Die Windrichtung bestimmt die von Emissionsquellen beaufschlagten Gebiete. Die Emission erfolgt somit in Richtung des Windes. Der Wind hat eine verdünnende Wirkung auf die Konzentration des Formaldehyds hinter dem Schornstein bzw. Kamin der Emissionsquelle. Die exponentielle Zunahme der Windgeschwindigkeit mit der Höhe begünstigt die Verteilung des Formaldehyds aus hohen Kaminen. Bezogen auf gleiche Höhe ist die Windgeschwindigkeit über ebenem Gelände wegen der geringeren Bodenrauigkeit höher als über stark gegliedertem Gelände mit größerer Bodenrauigkeit. Unter dem Einfluss der Reibung kann der Wind mit der Höhe auch eine Drehung erfahren. Die Windgeschwindigkeit hat einen mittleren Tagesgang mit einem Maximum am Tag und einem Minimum in der Nacht. Die Windstärke beeinflusst, durch die von ihr verursachte Turbulenz und Wanderungsgeschwindigkeit, die Verteilung des Formaldehyds im Luftraum. Die Windrichtung ist darüber hinaus ein erstes Kriterium für bestimmte Wetterlagen. Austauscharme Wetterlagen sind insbesondere bei Inversionswetterlagen gegeben. Bei Inversionen nimmt die Lufttemperatur in bestimmten Schichten mit der Höhe zu. Dabei bilden sich „Sperschichten“, die den vertikalen Luftaustausch behindern. Bei niedrigen Untergrenzen von Inversionsschichten reichern sich Abgase in Bodennähe an, weil ihr Aufsteigen in höhere Luftschichten stark behindert wird.

Die Berechnung der Verteilung von Abgasen nach Ableitung aus einer Emissionsquelle erfolgt nach dem Gauß-Modell. Danach erfahren die Abgase nach ihrem Eintritt in die Atmosphäre zunächst einen durch ihre Austrittsgeschwindigkeit und Temperatur verursachten Auftrieb (Schornsteinüberhöhung) und werden dann mit der Windströmung transportiert und somit in horizontaler und vertikaler Richtung gemäß einer Gauß-Verteilung verdünnt. Am Auftreffpunkt des Ausbreitungskegels auf den Boden ergibt sich die höchste Immissionskonzentration. Dieser Punkt im Gelände kann bei Messungen kaum geortet werden, zumal er in Abhängigkeit schon von geringen Windschwan-

kungen gewöhnlich während der Probenahmedauer wandern würde. [8] S.75-78, [1] S.216

Zunächst musste zur Durchführung der Ausbreitungsrechnung die Vorbelastung für Formaldehyd in Sachsen ermittelt werden. Da nach Expertenwissen des Herrn Dr. Günther Schmidt (IfU) [54] keine Vorbelastungswerte für Formaldehyd in Sachsen vorliegen, wird dieser Wert in der Berechnung auf 0 gesetzt. Es kann somit nur die Zusatzbelastung ermittelt werden. Die erste Ausbreitungsrechnung wurde für eine Anlage in Lösnitz durchgeführt. Dabei wird das Beurteilungsgebiet so festgelegt, dass sich die Anlage in der Mitte des Rechengitters befindet. Um die Ausbreitungsrechnung durchführen zu können, ist es bei jeder nachfolgend betrachteten Anlage notwendig, einige Dateien zu erstellen und diese in die jeweiligen Projektordner für das Programm Lasat 3.0 einzufügen. Es müssen die wichtigsten Eingabeparameter wie Rechengebiet, Emissionsquellen, Quellstärken, Quellhöhen sowie Quelldurchmesser in der Datei „param.def“ enthalten sein. Des Weiteren wird eine Datei benötigt, welche die statistischen Wetterdaten für das Beurteilungsgebiet enthält. Diese Informationen werden in der Datei „wetter.def“ gespeichert und dem Ordner hinzugefügt. Für Betrachtungen im komplexen Gelände wird zusätzlich eine „lib“-Datei erzeugt, welche Angaben zum Gelände des Beurteilungsgebietes beinhaltet. Nach dem Vorhandensein aller benötigten Dateien kann die Berechnung mit Lasat 3.0 gestartet werden. Insgesamt wurden Ausbreitungsrechnungen für 7 Anlagen durchgeführt.

Die Anlage in Lösnitz fertigt Eisengussteile mit dem Furanharzverfahren. Dabei entsteht insbesondere im Bereich der Sandregenerierung Formaldehyd, welches dann schließlich über den Abluftschlot in die Umwelt gelangt.

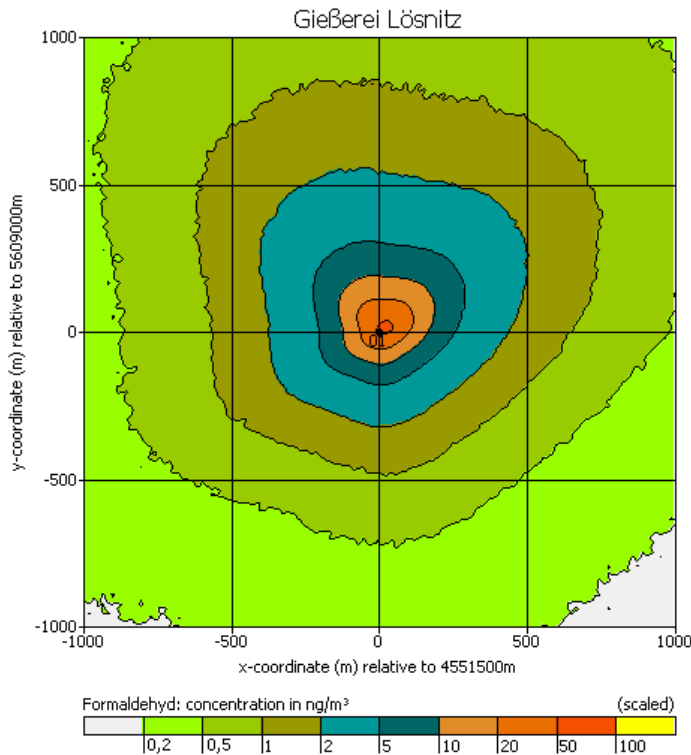


Abb. 23: Gießerei Lösnitz im ebenen Gelände

Für die Ausbreitungsrechnung der Gießerei in Lösnitz wurde die Qualitätsstufe für die Rechnung im Programm Lasat 3.0 auf 0 gesetzt. Die Qualitätsstufe muss ausreichend groß sein, denn umso größer diese ist, desto mehr Teilchen werden pro Emissionsrate [g/s] berechnet. Dadurch entstehen geringere Fehler in den Zellen des Rechengitters. Es werden somit 500 Partikel für die Rechnung losgeschickt und deren Ausbreitung berechnet. Dabei wird die statistische Verteilung der Konzentration über ein Jahr gemittelt.

Für die Gießerei in Lösnitz wurde eine Ausbreitungsrechnung im ebenen Gebiet und im Gelände durchgeführt. Dabei wird im Bereich der Sandregenerierung das meiste Formaldehyd mit 9,46 kg/a frei. Dieser Schadstoff wird schließlich über den Abluftschlot mit einer Höhe von 12m und einem Durchmesser von 0,64m geleitet und in die Umgebung abgegeben. Durch die Transmission wird Formaldehyd in der Atmosphäre verteilt und gelangt schließlich als Immission zum Erdboden. Im ebenen Gebiet wird in Abb. 23 ersichtlich, dass die Immissionskonzentration im Jahresmittel in der direkten Umgebung der Emissionsquelle 50 ng/m³ beträgt. Die Immissionen, die in der Nachbarschaft zu erwarten wären, betragen im Abstand von 0,1 km 20 ng/m³. Aufgrund der Abgasfahnenüberhöhung und der Windrichtung werden in weiterer Entfernung 10 ng/m³ prognostiziert. In 0,2 - 0,5 km Entfernung wird lediglich eine Immission von 2 ng/m³ - 5 ng/m³ erwartet.

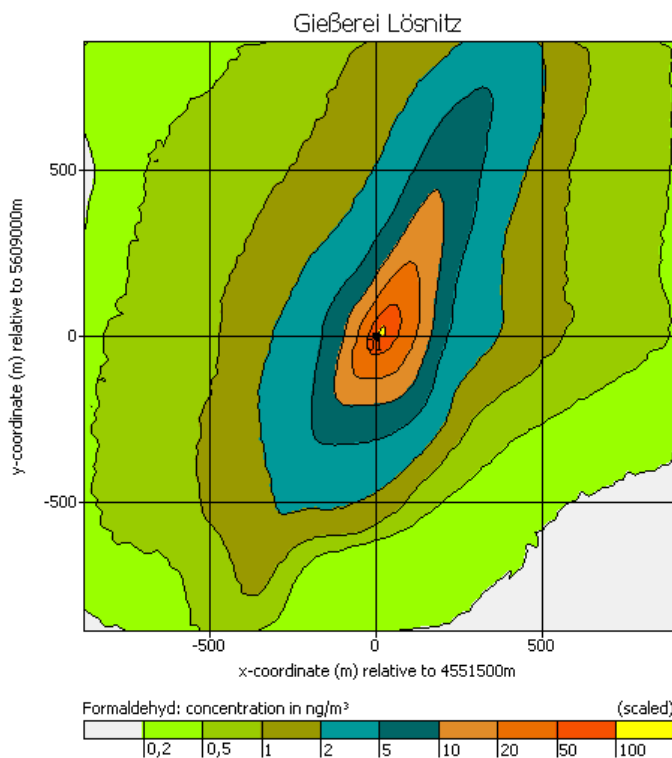


Abb. 24: Gießerei Lösnitz in Erzgebirgslage

Da es für Lösnitz zwingend erforderlich ist das Gelände für die Ausbreitung mit zu betrachten, wurde eine erneute Rechnung mit Gelände durchgeführt, denn Lösnitz liegt im westlichen Teil des Erzgebirges in einem lang gezogenen Tal in ca. 432 m Höhe über NN und ist eingebettet von bewaldeten Höhenzügen. Daher ergeben sich wesentliche Unterschiede in der Ausbreitung von Formaldehyd, was in Abb. 24 erkennbar ist. Dabei liegt die Emissionsquelle inmitten der höchsten Konzentration an Formaldehyd mit 100 ng/m³. Das Gebiet mit dieser Konzentration erstreckt sich über eine Distanz von 25 m nach Westen und Süden. Aufgrund der atmosphärischen Vorgänge und der Tallage von Lösnitz sind in nordöstlicher Richtung diese Immissionen in ca. 100 m Entfernung noch zu erwarten.

Generell ist ein wesentlicher Unterschied im Verlauf der Ausbreitungsrechnungen festzustellen. Bei der Berechnung mit Gelände werden die Emissionen entlang des Erzgebirges transmittiert, so dass die Immissionen in der Tallage verbleiben und einen länglichen Verlauf in Richtung Nordosten nehmen. Somit erfolgt eine Kanalisierung der Strömung vor dem Erzgebirge. Dies ist zusätzlich mit der dortigen Hauptwindrichtung zu begründen, da im Bereich um Lösnitz diese einen Verlauf von südwestlicher in nordöstliche Richtung vollzieht.

Bei der nachfolgenden Anlage handelt es sich um eine Anlage zur Herstellung von Spanplatten. Diese stellt den Größtemittenten für Formaldehyd in Sachsen dar und ist in Lampertswalde ansässig. Aufgrund der südwestlichen Lage von Lampertswalde am Westlausitzer Bergland werden die Emissionen der Emissionsquellen, wie in Abb. 25 deutlich wird, in Richtung Osten abgelenkt.

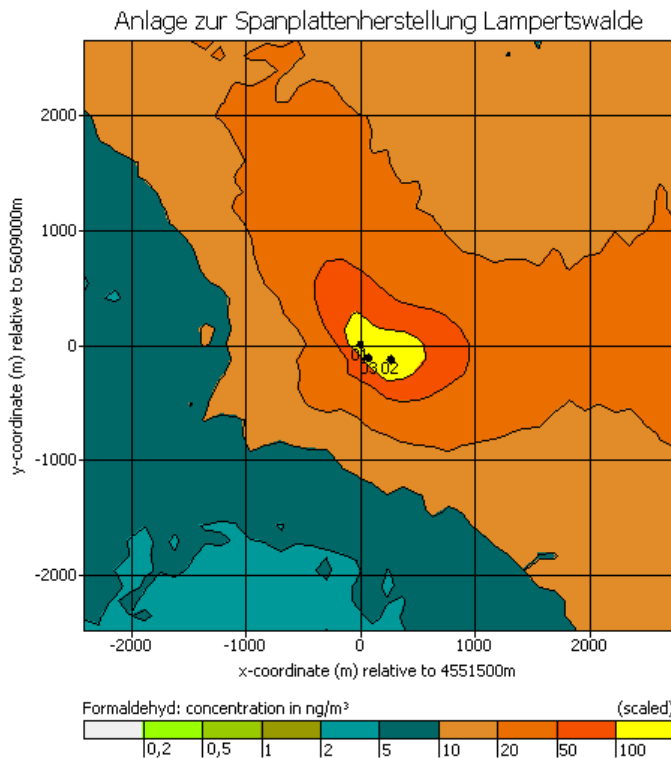


Abb. 25: Anlage zur Herstellung von Spanplatten

Die Anlage zur Spanplattenherstellung besitzt insgesamt 3 Emissionsquellen, wobei im Bereich der Faserplattenherstellung das meiste Formaldehyd mit 161340 kg/a frei wird. Die daraus abgesaugte Abluft wird schließlich über eine Abluftreinigungsanlage geführt und letztendlich an die Atmosphäre abgegeben. Die Emissionsquelle „Imprägnieranlage“ stößt lediglich 1457 kg/a und die Emissionsquelle „Formalinherstellung“ 1165 kg/a aus. Diese Abluftströme werden ebenfalls über eine entsprechende Abluftreinigungsanlage geführt. Aufgrund der Reinigung der Abluft sind geringe bis normale Emissionskonzentrationen vorhanden. Die Ursache für die hohe Emissionsrate der Anlage liegt in dem enorm hohen Abluftstrom von 614810 m^3/h während der Produktion der Spanplatten. Deshalb liegen im Umkreis von ca. 500 – 600 m noch Immissionskonzentrationen von 100 ng/m^3 vor. Ab einer Distanz von ca. 1 km betragen diese lediglich 20 – 50 ng/m^3 . In der Nachbarschaft im Abstand von ca. 2 km wären nur noch 2 ng/m^3 zu er-

warten. Generell ist die Lage der Anlage als kritisch anzusehen, da sich diese in einem Wohn- und Gewerbegebiet befindet. Es sind in direkter Nachbarschaft der Anlage Wohnbebauungen vorzufinden. Darüber hinaus wäre zu vermuten, dass die Quelhöhe des Schornsteins von 95 m einen großen Einfluss auf die Immissionen hat. Auf der Ausbreitungsrechnung ist allerdings zu erkennen, dass sich die höchsten Immissionen direkt an der Anlage und somit auch direkt im benachbarten Wohnbereich befinden und nicht wie erwartet, die Emissionen über die Wohnbebauungen hinaus getragen werden. Die Ursachen liegen in der Tatsache begründet, dass an der Anlage 3 Emissionsquellen vorliegen, wobei 2 Emissionsquellen eine Quelhöhe von 18 m und 20 m besitzen. Diese relativ geringen Schornsteinhöhen bewirken die Höchstkonzentration in der direkten Umgebung der Anlage.

Des Weiteren zählt das Stahlwerk in Riesa zu den Hauptemittenten von Formaldehyd mit einer Emissionsrate von 12567 kg/a. Dieser Schadstoff wird über die Kamine der Entstaubungsanlagen mit einer Höhe von 38m in die Umgebung emittiert. Wie bei der Anlage zur Spanplattenherstellung sind die hohen Formaldehydemissionsraten nicht mit hohen Formaldehydkonzentrationen, sondern mit den enorm hohen Abluftströmen von 612600 m³/h während der Produktion von Stahl zu begründen.

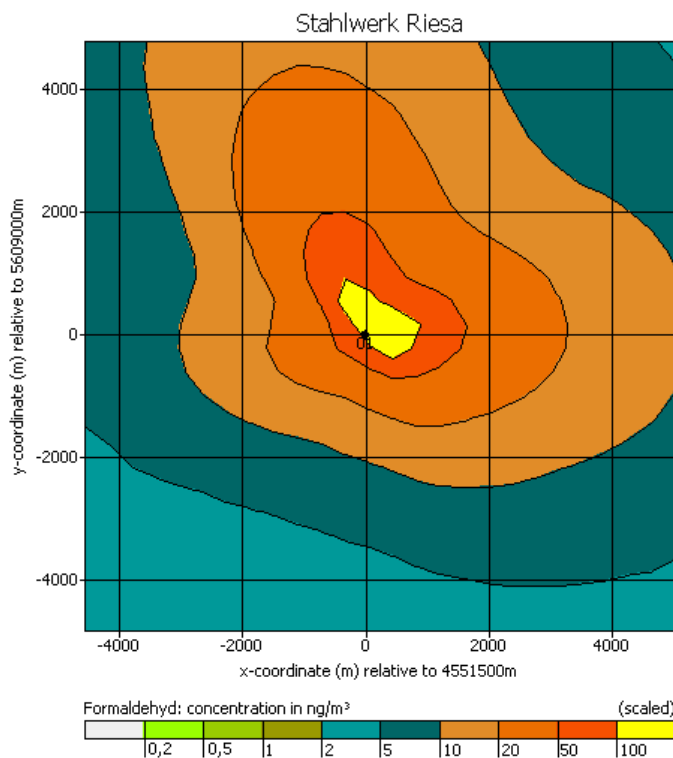


Abb. 26: Stahlwerk Riesa

Riesa ist in ebenem Gebiet gelegen. Dadurch breitet sich die Emission gleichmäßig und nicht wie bei den im Erzgebirge gelegenen Anlagen in Tallage aus. Wie in Abb. 26 erkennbar ist, sind im Umkreis von 1 km Immissionen von 100 ng/m^3 zu erwarten. Erst ab einer Entfernung von 2 – 3 km sind nur noch Immissionskonzentrationen von 5 ng/m^3 vorhanden.

Bei den nachfolgenden drei Eisengießereien wurde Formaldehyd im Bereich der Formstoffaufbereitung, Sandaufbereitung, in der Kernmacherei (Cold-Box-Kerne) sowie beim Auspacken der Kerne frei. Die Ursachen für die Emissionen sind insbesondere im Einsatz der verschiedenen Bindemittelsysteme wie zum Beispiel Furan-Formaldehydharz zu sehen. Durch das zusätzliche Einwirken der hohen Temperaturen während des Gießprozesses wird durch Thermolyse des Bindersystems Formaldehyd emittiert.

Die Gießerei 1 Schönheide ist im namensgebenden Ort ansässig und befindet sich im Westerzgebirge in einer Höhe von 700 m über NN. Schönheide ist in einem Nebental der Zwickauer Mulde gelegen. Da sich das Nebental in horizontaler Richtung erstreckt, werden die Emissionen hauptsächlich horizontal verteilt.

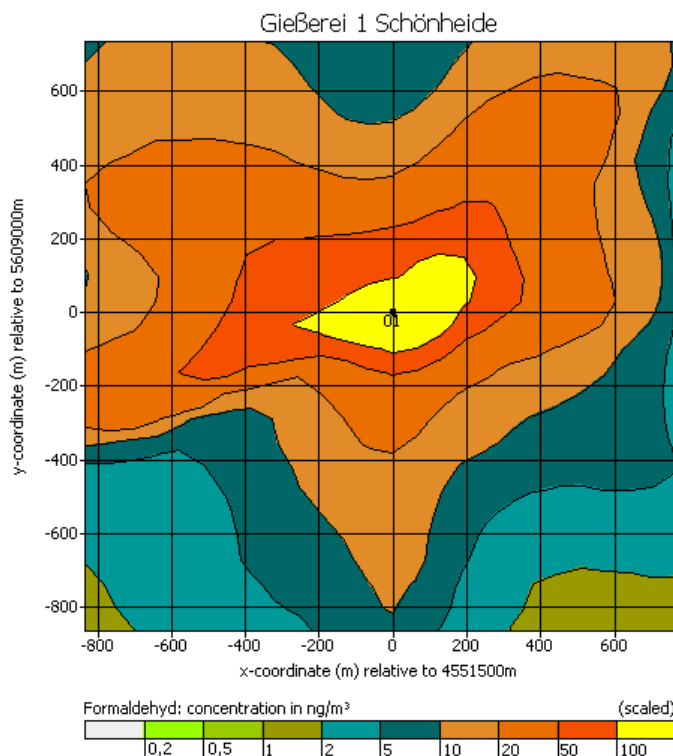


Abb. 27: Gießerei 1 Schönheide

Die Formaldehydemissionen werden somit vordergründig durch den Abluftstrom im Bereich der Formstoffaufbereitung frei. Daraus ergibt sich eine Emissionsrate von 0,0042 kg/a, welche über einen Abluftschlot mit einer Höhe von 16m in die Umgebung abgegeben wird. Die Emissionsquelle ist inmitten der höchsten Konzentration von 100 ng/m³ gelegen wie in Abb. 27 erkennbar ist. Diese Höchstkonzentration erstreckt sich dabei über ca. 200 m. In einer Entfernung von 200 – 600 m sind lediglich noch 20 – 50 ng/m³ zu erwarten.

Die Gießerei 2 Schönheide ist ebenfalls im oben genannten Ort ansässig und weist dieselben meteorologischen und geografischen Gegebenheiten wie Gießerei 1 auf. Formaldehyd wird dabei besonders im Bereich der Formerei über einen Abluftschlot in die Umgebung emittiert. Daraus ergibt sich eine Emissionsrate von 0,0087 kg/a. Infolge der enormen Schornsteinhöhe von 50 m, der Abgasfahnenüberhöhung und der wechselnden Windrichtung ist in Abb. 28 zu erkennen, dass zwei Bereiche im Umkreis von 400 m mit einer Immissionskonzentration von 10 ng/m³ vorliegen.

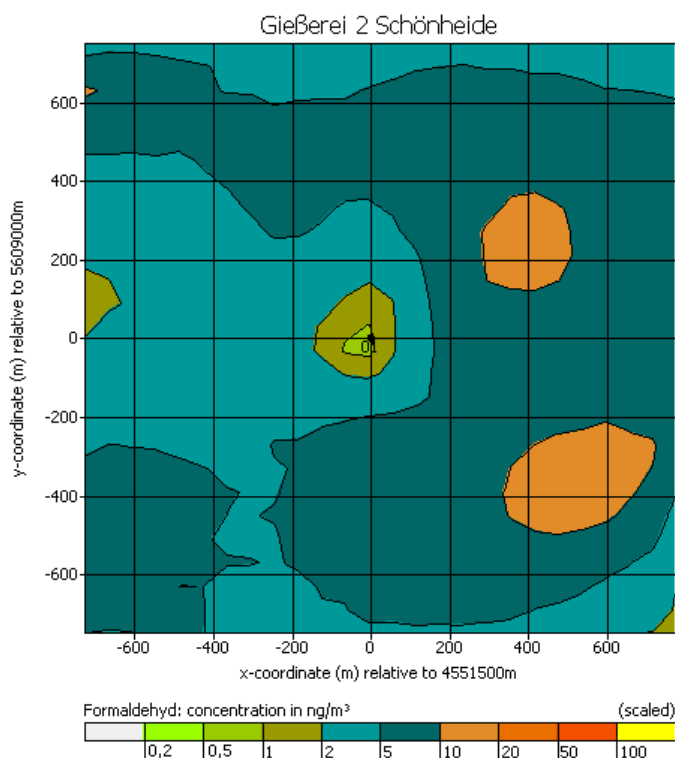


Abb. 28: Gießerei 2 Schönheide

Dadurch befindet sich nicht die höchste Immissionskonzentration in der direkten Umgebung der Anlage, sondern erst in 400 m Entfernung. Am Austritt der Emissionsquelle bzw. in unmittelbarer Umgebung liegt eine Konzentration von 0,5 ng/m³ vor. Die For-

maldehydemissionen werden somit aufgrund der immensen Schornsteinhöhe über das Anlagengelände und die direkte Umgebung hinweg getragen. Generell können die Immissionen der Anlage als relativ gering angesehen werden.

Die Gießerei in Elterlein emittiert Formaldehyd insbesondere im Bereich des Schmelzprozesses über einen Kamin mit einer Höhe von 12 m. Die sich daraus ergebende Emissionsrate beträgt 0,0121 kg/a. Infolge der relativ kleinen Schornsteinhöhe sind die höchsten Immissionskonzentrationen in der direkten Umgebung der Anlage zu erwarten. Die Gießerei liegt im oberen Erzgebirge mit einer Höhe von 620 m ü. NN. Die Emissionen breiten sich, wie in Abb. 29 ersichtlich wird, in nordwestliche Richtung aus. Dies ist mit der Tallage des Ortes an der Zwickauer Mulde zu begründen. Die Formaldehydemissionen breiten sich somit vertikal mit dem Verlauf der Zwickauer Mulde von Südost nach Nordwest aus.

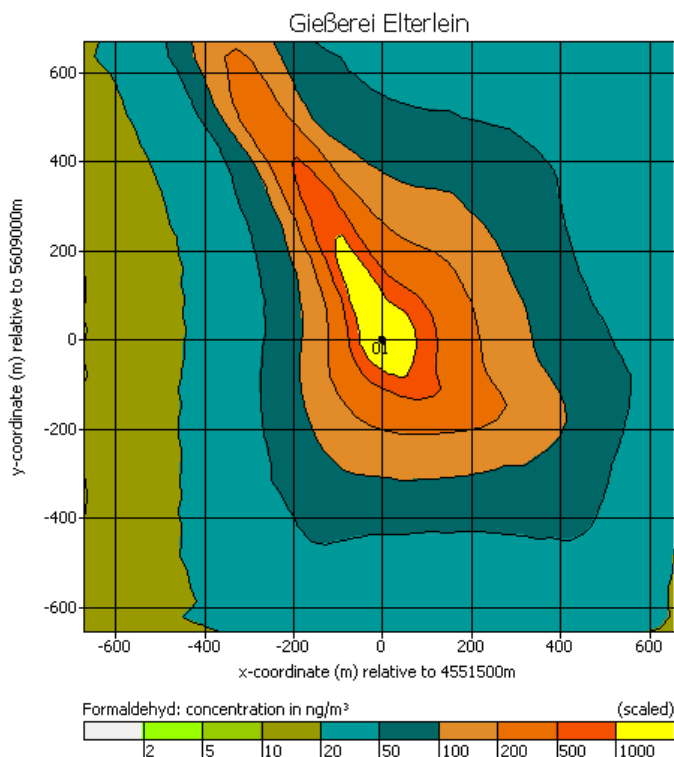


Abb. 29: Gießerei Elterlein

Die Anlage befindet sich im Zentrum der Höchstkonzentration mit 1000 ng/m³, welche durchaus noch in 200 m Entfernung zu erwarten ist. Erst ab einer Ausbreitung von 250 – 400 m liegen Immissionskonzentrationen von 500 ng/m³ vor. Bei der Gießerei in Elterlein sind die Immissionen im Vergleich zu den anderen Gießereien als verhältnismäßig hoch einzuschätzen.

Die in Erla gelegene Gießerei emittiert vorwiegend Formaldehyd im Bereich der Formerei/ Sandaufbereitung und im Bereich der Kernmacherei. In der Sandaufbereitung wird allerdings mengenmäßig mehr Formaldehyd mit 0,0079 kg/a frei. In der Kernmacherei sind es dagegen lediglich 0,0008 kg/a. Aufgrund einer relativ geringen Schornsteinhöhe von 17 m sind die höchsten Immissionskonzentrationen in direkter Umgebung der Anlage vorzufinden. Wie in Abb. 30 erkennbar, befindet sich die Höchstimmissionskonzentration mit 1000 ng/m³ in 50 m Entfernung. Im Umkreis von 100 - 500 m sind dagegen noch Konzentrationen von 100 – 200 ng/m³ zu erwarten.

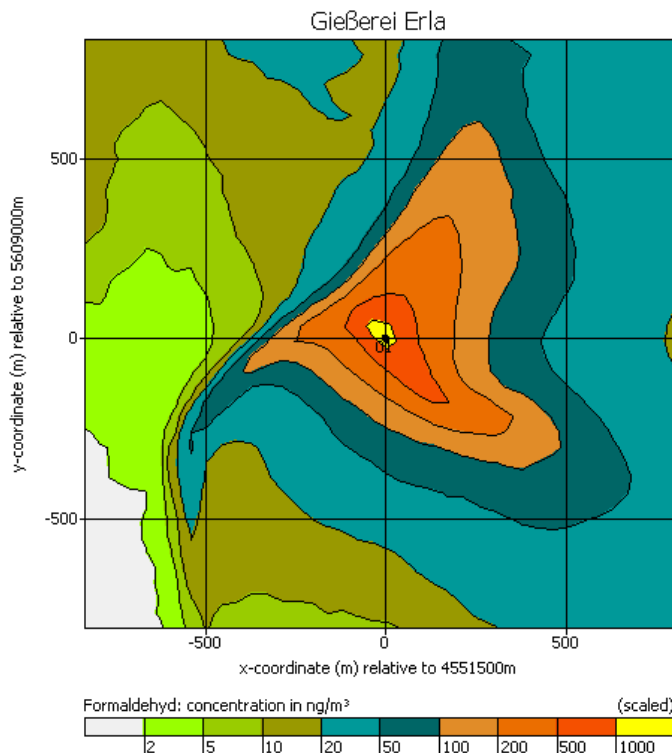


Abb. 30: Gießerei Erla

Die Gießerei Erla liegt im Erzgebirge und befindet sich ebenfalls in Tallage. Infolge der Ansässigkeit am Fuße des Erzgebirges werden die Emissionen entlang der Ausbildung der Erhebungen verteilt. Generell breitet sich die Immission gleichmäßig in alle Richtungen aus. Dennoch ist ein tendenzieller Transport in Richtung Südost zu erkennen, welcher mit der Hauptwindrichtung aus Norden zu begründen ist.

Infolge der Rechnung mit der Komponente „Gas unbekannt“ war es nicht möglich die nasse sowie trockene Deposition von Formaldehyd zu quantifizieren. Deshalb wurde zur Abschätzung des Verhaltens dieses Stoffes ein vergleichbares, anderes Gas mit ähnlichen Eigenschaften wie Formaldehyd aus dem Programm Lasat 3.0 zur Betrachtung herangezogen. Im Folgenden wurde eine Ausbreitungsrechnung mit dem Gas Ammoniak durchgeführt, da dieses die meisten Übereinstimmungen mit den Eigenschaften von Formaldehyd aufwies. Des Weiteren musste ein Stoff gefunden werden, welcher in der Ausbreitungssoftware von Lasat 3.0 vorhanden war. Nachfolgend ein kurzer Überblick über die Eigenschaften von Ammoniak im Vergleich zum Schadstoff Formaldehyd.

Tab. 7: Vergleich von Ammoniak mit Formaldehyd

Eigenschaften	Ammoniak	Formaldehyd
Farbe/ Geruch/ Aggregatzustand	Farbloses, stechend riechendes Gas	Farbloses, stechend riechendes Gas
Dichte	0,77 g/cm ³	0,82 g/cm ³
Dampfdruck	8573 x 10 ² Pa (20°C)	0,43 x 10 ⁻³ Pa (20°C)
Löslichkeit	Nicht sehr gut in Wasser löslich	Sehr gut in Wasser löslich
Siedepunkt	-33 °C	-19 °C
Henry-Konstante	58 mol atm ⁻¹	3200 mol atm ⁻¹

Diese Ausbreitungsrechnung mit Ammoniak wurde für die Anlage zur Spanplattenherstellung durchgeführt, da diese den Größtemittanten im Freistaat Sachsen darstellt. Somit können die Ergebnisse repräsentativ für die anderen Anlagen übernommen werden. Infolge der Berechnung der Ausbreitung von Ammoniak ist es möglich die Immissionskonzentration und die Transportwege für Formaldehyd für die Anlagen in Sachsen abschätzen zu können.

Wie in Abb. 31 erkennbar, sind die höchsten Immissionskonzentrationen in der direkten Umgebung der Anlage mit 0,5 µg/m³ zu erwarten. In einer Entfernung von 250 – 1500m liegen noch Immissionen von 0,1 – 0,2 µg/m³ vor.

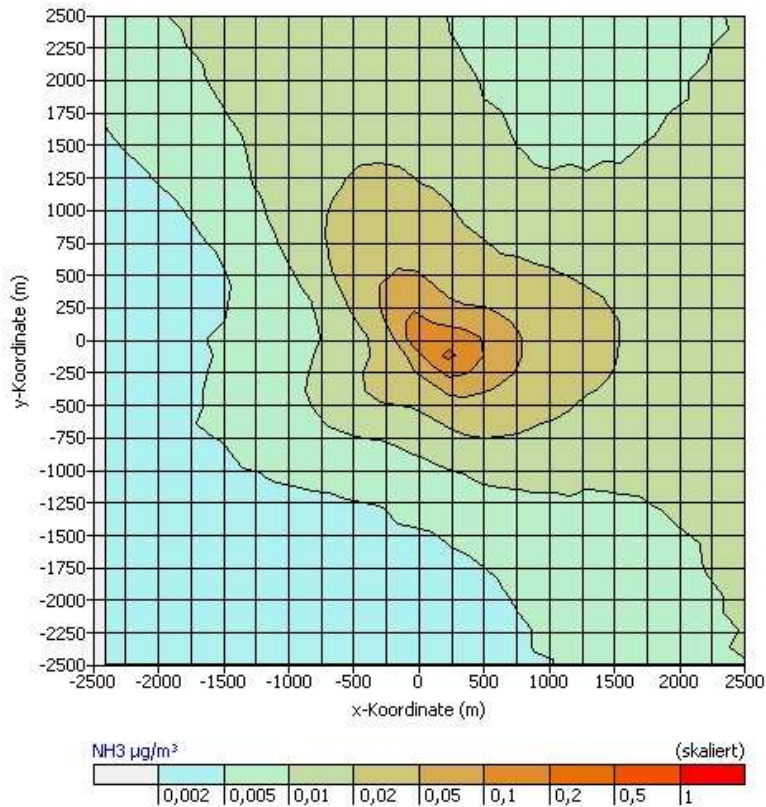


Abb. 31: Ausbreitungsrechnung mit Ammoniak

Im Vergleich zur Abb. 32 ist ersichtlich, dass Ammoniak sich bezüglich des Transportverhaltens in 750 m Entfernung simultan zum Gas „unbekannt“ verhält. Die Ausbreitung kann als nahezu gleich angesehen werden. Die Immissionen von $0,05 \mu\text{g}/\text{m}^3$ breiten sich bei Ammoniak relativ gleichmäßig aus. Wohingegen sich die Immissionen des Gases „unbekannt“ von $0,05 \mu\text{g}/\text{m}^3$ wesentlich weiter in Richtung Nordwest ausweiten. Daher ist dieser Schadstoff in dieser Konzentration noch in 2500 m zu erwarten.

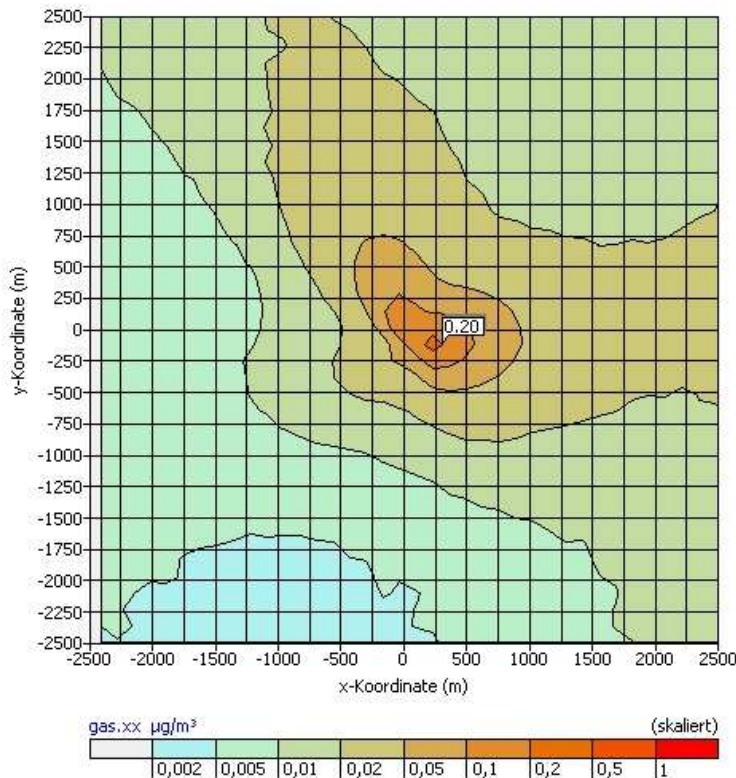


Abb. 32: Ausbreitungsrechnung „Gas unbekannt“

Um die quantitativen Formaldehydimmissionen in der direkten Umgebung der Anlage bzw. in ca. 200 m Entfernung ermitteln zu können sowie grobe Abschätzungen zur Ausbreitung von Formaldehyd durchzuführen, ist es möglich Ammoniak zur Berechnung der Ausbreitung von Formaldehyd heranzuziehen aufgrund des ähnlichen Transportverhaltens in der Atmosphäre. In Abb. 31 sowie Abb. 32 ist zu erkennen, dass die Komponente „Gas unbekannt“ einen längeren Transportweg aufweist als Ammoniak. Formaldehyd müsste jedoch eine kleinere Ausbreitung als Ammoniak besitzen infolge der verstärkten Wasserlöslichkeit in der Atmosphäre. Daraus resultierend würde es schneller in der Atmosphäre abgebaut und über Depositionsvorgänge ausgetragen werden. Dadurch wäre zur Abschätzung der Immissionssituation die Berechnung mit dem Schadstoff Ammoniak sinnvoll.

Schlussfolgernd können die von den betrachteten Anlagen ankommenden Formaldehydimmissionen in der Umwelt als relativ gering angesehen werden, da quantitativ Immissionen von nicht mehr als 1000 ng/m³ in der direkten Umgebung zu erwarten sind. Der Immissionsgrenzwert für krebserzeugende Stoffe wie Formaldehyd beträgt nach VDI 0,024 mg/m³ bzw. 24000 ng/m³. Da dies allerdings nur ein Richtwert ist, kann das umweltschädigende Potential von Formaldehyd auf die Umgebung nicht vollständig abgeschätzt werden.

7 Zusammenfassung und Ausblick

Ziel dieser Arbeit war es, die Formaldehydimmissionen im Umkreis ausgewählter Anlagen zu untersuchen sowie die daraus resultierenden Ergebnisse zu diskutieren. Dabei erfolgte zuerst eine Einordnung aller natürlichen und anthropogenen Emittenten für Formaldehyd.

Anschließend erfolgte die Ermittlung von Messwerten für einzelne Anlagen bzw. Anlagentypen mittels der Datenbank AIS-I, wobei eine Beschränkung auf die genehmigungsbedürftigen Anlagen erfolgte, bei denen die entsprechenden Messwerte vorlagen. Dadurch war es möglich, die Hauptemittenten für Formaldehyd zu ermitteln, um daraus die Emissionsquellen in Quellgruppen unterteilen zu können.

Weiterhin war es aufgrund der Arbeit mit dem Softwareprogramm ArcGIS möglich, ein Emissionskataster für den Freistaat Sachsen zu erstellen und die Gesamtemissionen in kg/a für Formaldehyd in Sachsen zu evaluieren.

Daraus ableitend wurden schließlich Ausbreitungsrechnungen unter Berücksichtigung des Abbaus in der Atmosphäre unter unterschiedlichen Witterungseinflüssen für ausgewählte Anlagen durchgeführt. Von den einzelnen betrachteten Anlagen wurden letztendlich Rückschlüsse auf das Verhalten von Formaldehyd für den Freistaat Sachsen gezogen. Um den Abbau jedoch quantitativ einordnen zu können, war es notwendig ein Gas zu finden, dessen chemisch-physikalische Eigenschaften, denen von Formaldehyd ähneln. Deshalb wurde eine Ausbreitungsrechnung für den Größtemittenten in Sachsen mit Ammoniak wiederholt und mit den Ergebnissen von Formaldehyd („Gas unbekannt“) verglichen. Somit konnte der Abbau von dem emittierten Formaldehyd bis hin zur ankommenden Immissionskonzentration quantitativ ermittelt und anschließend diskutiert werden.

Generell war abschließend feststellbar, dass die Größtformaldehydemittenten im Bereich der Gießereibranche und Spanplattenherstellung zu finden sind. Die Blockheizkraftwerke wiesen vereinzelt hohe Emissionsraten auf. Insgesamt betrachtet, sind die BHKW allen anderen Anlagentypen mengenmäßig überlegen. Somit sollten diesbezüglich weiterhin Maßnahmen gefunden werden, die Formaldehydemissionen zu senken.

Durch organisatorische, stoffbezogene und verfahrenstechnische Maßnahmen könnte Formaldehyd vermindert werden. Im industriellen Bereich wäre es möglich, durch organisatorische Maßnahmen Verfahrensabläufe zu optimieren und dadurch Formaldehydemissionen zu reduzieren. Verfahrensbezogene Maßnahmen könnten durch die Umstellung auf emissionsarme Verfahren oder entsprechende Abgasreinigungsverfahren eingeführt werden. Stoffbezogene Maßnahmen wären nur durch eine Substitution

von Formaldehyd realisierbar. Dieser Gesichtspunkt kann derzeit noch nicht umgesetzt werden, da es keinen geeigneten Ersatzstoff für Formaldehyd insbesondere in der Gießereibranche als Bindersystem gibt. Emissionsarmen Verfahren ist generell der Vorrang zu geben. Diese sind allerdings sehr kostspielig, wodurch die meisten Unternehmen auf eine Abluftreinigung zurückgreifen wie die betrachtete Anlage zur Herstellung von Spanplatten in Lampertswalde. Bei den BHKW können durch entsprechende Wartungsintervalle sowie die Verwendung geeigneter Brennraumtemperaturen und Brennstoffe die Emissionen reduziert werden

Im Rahmen dieser Arbeit wurden die von den untersuchten Anlagen ausgehenden Emissionen mit den jeweiligen Immissionen als relativ gering angesehen. Zudem wurde vergleichend der „Immissionsgrenzwert“ mit $0,024 \text{ mg/m}^3$ seitens des VDI zur Beurteilung der Gefährlichkeit von Formaldehyd herangezogen. Da die höchsten Immissionskonzentrationen von Formaldehyd allerdings nur bei 1000 ng/m^3 lagen, kann die Wirkung auf die menschliche Gesundheit als gering angesehen werden. Da dieser zur Beurteilung herangezogene Wert lediglich ein Richtwert ist und kein gesetzlicher Grenzwert, ist es schwierig eine exakte Aussage zur Gefährlichkeit zu treffen. Generell können schon die geringen Formaldehydkonzentrationen Augen- sowie Schleimhautreizungen beim Menschen verursachen. Durch den chemischen und physikalischen Abbau von Formaldehyd in der Atmosphäre entsteht saurer Regen, welcher nachfolgend Schädigungen an Pflanzen bewirken kann. Durch das Einbringen des Formaldehyds in Gewässer werden auch Beeinträchtigungen an Wasserorganismen hervorgerufen. Des Weiteren wurden in Untersuchungen an Pflanzen Blattnekrosen festgestellt.

Zukünftig kann es als sinnvoll angesehen werden, ein vollständiges, ideales Emissionskataster für Formaldehyd zu erstellen, um eine höhere Genauigkeit der Ergebnisse zu gewährleisten. Dahingehend sollten an den Anlagen nicht nur einzelne bzw. diskontinuierliche Messungen durchgeführt werden, sondern die Tendenz zu kontinuierlichen Messungen übergehen. Dadurch würde eine höhere statistische Genauigkeit der Messergebnisse erreicht werden.

Des Weiteren sollte aufgrund der Humankanzerogenität von Formaldehyd ein Immissionsgrenzwert für Formaldehyd eingeführt werden, um mögliche Gefahren bzw. Beeinträchtigungen auf den Menschen und die Umwelt beurteilen und abschätzen zu können. Zudem würde dieser Grenzwert der Rechtssicherheit im Freistaat Sachsen dienen.

Literaturverzeichnis

Bücher:

- [1] Alloway B.J. und Ayres D.C.: „Schadstoffe in der Umwelt – Chemische Grundlagen zur Beurteilung von Luft-, Wasser- und Bodenverschmutzungen“ – Spektrum Lehrbuch - München, 1996, S. 216
- [2] Bahadir M., Parlar H., Spiteller M.: „Springer Umwelt-Lexikon“ - 2. Aufl. – Springer-Verlag - Heidelberg, 2000, S. 455
- [3] Bauer Markus, Wachtmeister Georg, TU München: „Untersuchungen der Wirkzusammenhänge zur innermotorischen Beeinflussung der Formaldehydbildung und Darstellung der Einflussparameter“ FVV-Vorhaben Nr.918 „Formaldehyd - Wirkmechanismen“, Bericht zum Forschungsvorhaben Heft R547-2008, Frankfurt am Main, 10/2008, S.47-50
- [4] Bauer Markus, Wachtmeister Georg, Technische Universität München: FVV-Forschungsvorhaben Nr. 918 „Entstehung von Formaldehyd in Mager-Gasmotoren“ - Motortechnische Zeitschrift Ausgabe Nr.: 2009-08 – München, 2009, S. 13
- [5] Baumbach, Günter: „Luftreinhaltung“- 3. Aufl. – Springer Verlag - Berlin, 1993; S.59
- [6] Becker, H.; Löbel, J.: „Atmosphärische Spurenstoffe und ihr physikalisch-chemisches Verhalten“ - Springer Verlag - Heidelberg, 1985, S. 79
- [7] Bliefert, Claus: „Umweltchemie“ – Wiley VCH - Berlin, 1994, S. 100, 173-174
- [8] Brauer, Heinz: „Handbuch des Umweltschutzes und der Umweltschutztechnik Band 1 – Emissionen und ihre Wirkungen“ – Springer Verlag - Heidelberg, 1995; S. 57, 59, 75- 78
- [9] Bundesministerium für wirtschaftliche Zusammenarbeit: „Umwelt-Handbuch – Arbeitsmaterialien zur Erfassung und Bewertung von Umweltwirkungen Band III“ – Vieweg - Berlin, 1993, S. 297ff
- [10] Fabian, Peter: „Atmosphäre und Umwelt“ – 4.Aufl. – Springer Verlag – Heidelberg, 1992; S. 89f
- [11] Giehring, Sebastian: „Aufbau und Einsatz eines Formaldehyd-Meßsystems zur kontinuierlichen Bestimmung von Immissionskonzentrationen“ – Dissertation, Hamburg, 1999, S. 4, 6, 7, 16

-
- [12] Janicke Consulting: „LASAT Dispersions Model - Referenzbuch Version 3.0“, - Überlingen, May 2007, S. 1
- [13] Klippel, Tim: „Hydroperoxide und Formaldehyd in der Troposphäre in Europa“ - Dissertation der naturwissenschaftlichen - mathematischen Gesamtfakultät der Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg - Heidelberg, 2009, S. 1-5
- [14] Klöpffer, Walter: „Verhalten und Abbau von Umweltchemikalien – physikalisch, chemische Grundlagen“ – Sonderdruck 1.Aufl. – ecomed, 1996, S. 92, 93
- [15] Koch, Rainer: „Umweltchemikalien – physikalisch chemische Daten, Toxizitäten, Grenz- und Richtwerte, Umweltverhalten“ – 3.Aufl. – Weinheim VCH - Weinheim, 1995, S. 25, 261, 263-264
- [16] Koß, Volker: „Umweltchemie – Eine Einführung in Studium und Praxis“ Springer-Verlag - Heidelberg, 1997, S. 17, 32, 74
- [17] Kümmel, Rolf; Papp, Sandor: „Umweltchemie – Eine Einführung“ – 2. unveränderte Aufl. – Weinheim Wiley-VCH - Weinheim, 1990, S. 136, 140, 142
- [18] Materialien Umweltbundesamt 2/80: „Emissionsfaktoren für Luftverunreinigungen – Feuerungs- und Aufbereitungsanlagen sowie Lagerung und Umschlag fester und flüssiger Stoffe“ ; Erich Schmidt Verlag Berlin, 1977; S.6
- [19] Moussiopoulos N., Oehler W., Zellner K.: „Kraftfahrzeugemissionen und Ozonbildung“ – 2. Aufl. – Springer Verlag - Heidelberg, 1992, S. 5-6
- [20] Matschullat J., Tobschall H.J., Voigt H.-J.: „Geochemie und Umwelt – relevante Prozesse in der Atmo-, Pedo- und Hydrosphäre“ – Springer Verlag – Heidelberg, 1997, S.7
- [21] Liebig, Wolfgang; Mummmenthey, Rolf-Dieter: „ArcGIS-ArcView9 – Band 1: ArcGIS Grundlagen“ - 2. Aufl. – Points Verlag Norden Halmstadt, 2008
- [22] Liebig, Wolfgang: „Desktop-GIS mit ArcView GIS – Leitfaden für Anwender“ – 2.Aufl. – H. Wichmann Verlag Heidelberg, 1999
- [23] Parlar, Angerhöfer: „Chemische Ökotoxikologie“ – 2. Aufl. – Springer Verlag - Heidelberg, 1995, S. 71
- [24] Sächsisches Landesamt für Umwelt, Landwirtschaft und Geologie; Torsten Moczigemba: „Studie zu Maßnahmen zur Minderung von Formaldehydimmissionen an mit Biogas betriebenen BHKW“ Abschlussbericht 16.12.2008, Seiten 13-14

-
- [25] Schneider, Christiane: „Emissionskataster zur Berechnung der Ausbreitung von Luftschadstoffen“ - 1.Aufl. - VDI Verlag GmbH - Heidelberg, 1994; S.1, S. 9f
- [26] Schorling M., Schiegl W.-E.: „TA Luft – Vorschriften und Erläuterungen zum Immissionsschutz, Beispiele von Ausbreitungsrechnungen“ – 2.Aufl. – ecomed, 1995
- [27] Seinfeld John H., Pandis Spyros N.: „Atmospheric Chemistry and Physics – From Air Pollution to Climate Change“ – 2.Aufl. - Wiley-VCH - Berlin, 2008, S. 43-44, 219-221, 304, 338
- [28] Trapp, Dorothea: „Aldehyde und Ketone in der bodennahen nichturbanen Troposphäre“, Dissertation der naturwissenschaftlich-mathematischen Gesamtfakultät der Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg, 1995; S. 2 - 4
- [29] Umweltbundesamt: „Integrierte Vermeidung und Verminderung der Umweltverschmutzung - Referenzdokument über die besten verfügbaren Techniken für Schmieden und Gießereien“ – Merkblatt - Umweltbundesamt Dessau , 2004; S. ii
- [30] Wissenschaftlicher Beirat für Umwelthygiene im Bundesministerium für Umwelt, Jugend und Familie/ Österreichische Akademie der Wissenschaften: „Flüchtige Kohlenwasserstoffe in der Atmosphäre – Luftqualitätskriterien VOC“ - Wien, April 1997, S.7.16, 9.11, ix

Internetquellen:

- [31] Amt für Hochbauten der Stadt Zürich; Holz und Holzwerkstoffe:
URL:http://www.e3building.net/infos/Ausschreibungsgrundlagen/zuerich/ZH_Holz_und_HWS.pdf, verfügbar am 02.11.2009
- [32] AvK-TV e.V.: URL: <http://www.duroplast-info.de>, verfügbar am 07.12.2009
- [33] Bayrisches Landesamt für Umwelt, URL:
http://www.lfu.bayern.de/umweltwissen/doc/uw_32_kuenstliche_mineralfasern.pdf, verfügbar am 25.11.2009
- [34] Bundesanstalt für Risikoforschung Stellungnahme Nr. 023/2006 vom 30.März 2006 „Toxikologische Bewertung von Formaldehyd“ URL:
http://www.bfr.bund.de/cm/252/toxikologische_bewertung_von_formaldehyd.pdf,
verfügbar am 25.11.2009

-
- [35] Ernst Klett Verlag GmbH, URL: http://www.klett.de/sixcms/media.php/76/aufbau_atmos3.jpg, verfügbar am 08.10.2009
- [36] Hochschule für Technik und Wirtschaft Dresden (FH); Forschungsinstitut Fahrzeugtechnik, URL: <http://www.fif.mw.htw-dresden.de/forschung/Studie-Formaldehyd-BHKW.pdf>, verfügbar am 20.10.2009
- [37] Kompetenzzentrum technischer Umweltschutz, URL: <http://www.crtib.lu/Leitfaden/content/DE/116/C471/>; verfügbar am 21.12.2009
- [38] Landesverband des Kfz-Gewerbes Sachsen e.V., URL: http://kfz-sachsen.de/verband/zahlenfakten/index_20100127091022.html, verfügbar am 12.12.2009
- [39] Landratsamt Miltenberg, URL: <http://www.landratsamt-miltenberg.de/sv/Sg21/formulare/Innenraumschadstoffe.pdf>, verfügbar am 11.11.2009
- [40] Sächsisches Landesamt für Umwelt, Landwirtschaft und Geologie, Referat 51 "Luftqualität", URL: <http://www.smul.sachsen.de/umwelt/luft/3627.htm>, verfügbar am 25.11.2009
- [41] Schadstoffberatung Tübingen, URL: <http://www.schadstoffberatung.de/holz.htm>, verfügbar am 12.10.2009
- [42] Statistisches Landesamt des Freistaates Sachsen: „Statistisches Jahrbuch Sachsen 2008 - geografische und meteorologische Daten“ - Kamenz, 2008, Hauptabschnitt I URL: http://www.statistik.sachsen.de/11/JB/JB2008_1.pdf, verfügbar am 12.11.2009
- [43] Thüringer Landesanstalt für Umwelt und Geologie; R.Kunka, Workshop 11/2008 URL: http://www.tlug-jena.de/contentfrs/fach_02/biogasanlagen/kunka_ausbreitung.pdf, verfügbar am 26.10.2009
- [44] Universität Frankfurt: URL: http://www.geo.uni-frankfurt.de/iau/epos/Vorlesungen/epos/EPOS_WS09_10_L__sungen__bung_12.pdf, verfügbar am 06.12.2009
- [45] Unbekannt, URL: <http://www.fluxomat.de>, verfügbar am 30.11.2009
- [46] Unbekannt, URL: <http://lipo.it.da.ut.ee/~olli/eutr/html>, verfügbar am 27.10.2009
- [47] Unbekannt, URL: <http://www.technik-verstehen.de>, verfügbar am 30.11.2009

[48] Unbekannt, URL: <http://www.umweltanalytik.com/lexikon/ing10.htm>, verfügbar am 01.11.2009

[49] Unbekannt, URL: http://www.waldwissen.net/themen/umwelt/landschaft/luftverunreinigungen/bfw_ozonsy_mptome_2005_DE, verfügbar am 31.01.2010

Persönliche Kommunikation:

[50] Gnauk, Thomas Dr.: Leibniz-Institut für Troposphärenforschung e.V., E-Mail Kontakt vom 09.10.2009

[51] Hausmann, Andrea Dr.: Landesamt für Umwelt, Landwirtschaft und Geologie Referat 51 „Luftqualität“, Gespräch vom 08.10.2009 sowie E-Mail Kontakt vom 11.11.2009 und 30.11.2009

[52] Helber, Joachim Dr. rer. nat.: IfG – Institut für Gießereitechnik gGmbH, Fachbereich Fertigungs- und Umwelttechnik, Gespräch vom 27.11.2009

[53] Janicke, Ulf: Ingenieurbüro Janicke, E-Mail Kontakt vom 08.10.2009

[54] Schmidt, Dr. Günther: IfU GmbH – Privates Institut für Umweltanalysen

Erklärung zur selbstständigen Anfertigung der Diplomarbeit

Erklärung:

Hiermit erkläre ich, dass ich die vorliegende Diplomarbeit selbstständig und nur unter Verwendung der angegebenen Literatur und Hilfsmittel angefertigt habe.

Bearbeitungsort, Datum

Unterschrift